



# Viscoélasticité et récupération améliorée du pétrole

Jorge Avendano

## ► To cite this version:

Jorge Avendano. Viscoélasticité et récupération améliorée du pétrole. Autre. Université Paris-Est, 2012. Français. NNT : 2012PEST1020 . pastel-00695896

**HAL Id: pastel-00695896**

**<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00695896>**

Submitted on 10 May 2012

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



**UNIVERSITÉ PARIS-EST**

**Ecole Doctorale Sciences, Ingénierie et Environnement**

**THESE DE DOCTORAT**

**Structures et matériaux**

par

**Jorge Antonio Avendaño Benavides**

**Viscoélasticité et récupération améliorée du pétrole**

**Membres du Jury :**

Mr COUSSOT Philippe	Directeur de thèse	ENPC, Laboratoire Navier
Mme LINDNER Anke	Rapporteur	ESPCI
Mr CHOPLIN Lionel	Rapporteur	ENSIC
Mr HERZHAFT Benjamin	Co-directeur	IFP Energies Nouvelles
Mr VERGNES Bruno	Examineur	ParisTech
Mr BODIGUEL Hugues	Examineur	Institut Polytechnique de Bordeaux
Mr PANNACCI Nicolas	Invité	IFP Energies Nouvelles
Mr SALAGER Jean-Louis	Invité	Universidad de los Andes

# Remerciements

Je tiens à remercier au Docteur Philippe Coussot, Professeur à l'ENPC et directeur du laboratoire LMSCG, et au Docteur Benjamin Herzhaft, Chef du département de Chimie et Physico-chimie des fluides complexes et des matériaux à l'IFP Energies Nouvelles, qui m'ont donné sa confiance même avant d'arriver en France, qui m'ont encadré tout au long de cette thèse et qui m'ont permis de partager ses connaissances.

Je remercie a Nicolas Pannacci, ingénieur du département de Chimie et Physico-chimie des fluides complexes et des matériaux à l'IFP Energies Nouvelles, qui m'a aussi encadré des qu'il est arrivé non seulement a niveau des connaissances mais a niveau plus fondamental, la rédaction hors ma langue maternelle aurait été beaucoup plus difficile sans son aide.

Qu'ils soient aussi remerciés pour sa gentillesse, sa disponibilité permanente et pour les nombreux encouragements qu'ils m'ont prodigués.

Je remercie également à Patrick Gateau, ingénieur de recherche à l'IFP Energies Nouvelles, ses connaissances à niveau pratique et son aide pour développer les expériences de laboratoire ont été remarquables. Que ce remerciement soit extensible à Mme. Brigitte Betro et a Mme. Sylvie Perrin, techniciennes du département de chimie et physicochimie à l'IFP Energies Nouvelles, qui ont été toujours disponibles pour m'aider pendant toute la thèse.

J'exprime ma gratitude à mes collègues thésards à l'IFP Energies Nouvelles, Joëlle Eyssautier, Adeline Dupas et Céline Rondon-Villatte. Le soutien que J'ai reçu de votre part est inestimable, et votre amitié nous a fait sentir à Lisbeth et moi comme chez nous.

Merci a tout le reste du département de Chimie et Physico-chimie des fluides complexes et des matériaux à l'IFP Energies Nouvelles, particulièrement a Jean-François Argillier, Isabelle Henaut, Sylvie Gouzien, Patrick Thorat, Aurélie Mouret, Laurence Podesta et Anthony Hutin.

Merci a tout l'équipe du LMSGC particulièrement à Guillaume Ovarlez, Xavier Château, Jalila Boujlel, Claire Marlière, Thibaud Chevalier, Quentin Barral et Carmen Sanchez.

Merci à l'Université des Andes, en Merida, Venezuela pour le financement de mes études et particulièrement au Professeur Jean-Louis Salager du laboratoire FIRP, pour ouvrir le chemin qui m'a amené en France.

Enfin, je tiens à remercier ma femme : Lisbeth, qui a été avec moi pour partager cette expérience de vie si enrichissante, et aussi a ma famille : mon père Ruben Avendaño, ma mère Lourdes Fabiola Benavides, mon grand-père Antonio « Abuelin » Avendaño et mes trois sœurs Yvonne Eliana, Maria Eugenia et Ana Virginia, pour la énorme confiance que vous faites toujours sur moi...



## Résumé

*IFP Energies nouvelles, 1 et 4 avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil-Malmaison, France  
Université Paris-Est, Laboratoire Navier, Champs sur Marne, France*

Ce travail a pour but d'étudier l'effet du caractère élastique d'un fluide sur la quantité d'huile déplacée qui conditionne la qualité de la récupération assistée du pétrole. Nous avons réalisé des expériences de déplacements d'un fluide newtonien par un fluide newtonien ou divers fluides viscoélastiques en conditions d'écoulement stable dans diverses configurations d'une cellule de type Hele-Shaw et dans un microsysteme. Deux familles de fluides viscoélastiques (à base de polyacrylamide et de polyoxyde d'éthylène dans du polyéthylène glycol) ont été formulées, permettant de couvrir une large gamme de comportement élastique caractérisé principalement par la première différence de contraintes normales, sans modifier sensiblement la viscosité.

Pour les écoulements en canal une forme stationnaire de l'interface entre les deux fluides se met rapidement en place. Ce profil stationnaire est ensuite utilisé comme point de comparaison fondamental entre les fluides. L'effet du caractère viscoélastique du fluide déplaçant se manifeste clairement par un profil d'interface se propageant dans un canal droit, moins déformée qu'avec un fluide newtonien déplaçant. On retrouve le même type d'effet lors du passage de l'interface à travers une restriction : le fluide viscoélastique tend à mieux occuper la largeur du canal où il se trouve.

Un modèle est proposé qui permet d'analyser en partie ces résultats et tend à montrer que pour les écoulements en canal droit la forme de l'interface est déterminée durant le démarrage de l'écoulement et résulte d'une compétition entre des effets visqueux ou de contraintes normales et une hétérogénéité de la distribution de contraintes.

Mots clés : Viscoélasticité, Récupération améliorée du pétrole, Contrainte normale, Hele-Shaw.

## Viscoelasticity and Enhanced Oil Recovery

### Abstract

We study the possibility of enhancing oil recovery through an increase of the elasticity of polymer solutions used in this application. In order to clearly distinguish the possible effects we carried out tests in simple geometries, i.e. Hele-Shaw cells with or without cross-section contraction, and with well controlled fluids. As viscoelastic fluids we used PAM or PEG-PEO in water+sugar solutions, which exhibit significant normal stress differences at sufficiently high shear rates. The viscosity of these fluids was adjusted in order to have a displacing fluid of viscosity larger than the displaced fluid (Newtonian oil) so that the moving interface is in general stable.

For the flows through the straight channel we observed that a stationary interfacial front rapidly forms after start up. This stationary front is then used as a flow parameter for studying the impact of the fluid behaviour on the flow characteristics. The effect of elasticity clearly appears when this profile is less deformed with a displacing fluid exhibiting large normal stress difference than with a Newtonian fluid. The same result is obtained for the flow through a restriction: a fluid exhibiting high elasticity tends to occupy a wider area at the different stages of penetration of the Newtonian fluid and finally tends to clean the corners after the restriction exit. Note however that elongational effects tend to put slimmer the stationary shape of the fluid arriving at the contraction.

We propose a model which makes it possible to analyse these data and tends to demonstrate that for the flows in a straight channel the shape of the interface is decided during the start up stage and results from the competition between viscous or normal stress effects and some heterogeneities in the stress distribution.

Keywords : Viscoelasticity, EOR, Normal stress, Hele-Shaw.

# Table de matières

<b>INTRODUCTION</b>	<b>5</b>
<b>CHAPITRE 1 : CONTEXTE ET ÉTAT DE L'ART</b>	<b>9</b>
1.1 LA RÉCUPÉRATION AMÉLIORÉE DU PÉTROLE	11
1.1.1 ASPECT HISTORIQUE :	12
1.1.2 ASPECT TECHNIQUE	13
1.1.3 MÉCANISMES PHYSIQUES LIÉS À LA RÉCUPÉRATION TERTIAIRE	14
1.2 EOR CHIMIQUE, INJECTION DE POLYMÈRES (POLYMER FLOODING)	27
1.2.1 POLYMÈRES POUR LE POLYMER FLOODING	29
1.2.2 EFFICACITÉ DU POLYMER FLOODING	31
1.3 VISCOÉLASTICITÉ ET RÉCUPÉRATION AMÉLIORÉE DU PÉTROLE	32
1.3.1 EFFETS DE LA VISCOELASTICITE EN ECOULEMENT MONOPHASIQUE	33
1.3.2 EFFETS DE LA VISCOELASTICITE DANS UN ECOULEMENT DIPHASIQUE	34
1.3.3 ETAT DE L'ART	35
1.3.4 FORMULATION DU PROBLÈME	40
1.3.5 DÉMARCHE MÉTHODOLOGIQUE	43
<b>CHAPITRE 2 : RHÉOLOGIE</b>	<b>45</b>
2.1 RHÉOLOGIE. GÉNÉRALITÉS	47
2.1.1 TENSEUR DES CONTRAINTES	49
2.1.2 LE COMPORTEMENT NEWTONIEN	51
2.2 FLUIDES VISCOÉLASTIQUES :	52
2.2.1 VISCOÉLASTICITÉ LINÉAIRE :	53
2.2.2 VISCOÉLASTICITÉ NON LINÉAIRE (FORCES NORMALES) :	55

2.2.3 VISCOSITE ÉLONGATIONNELLE	56
<b>CHAPITRE 3 : MATÉRIELS ET MÉTHODES</b>	<b>59</b>
3.1 FORMULATION ET CARACTÉRISATION DES FLUIDES DE TRAVAIL :	61
3.1.1 FORMULATION	62
3.1.2 CARACTÉRISATION RHÉOLOGIQUE :	76
3.2 GÉOMÉTRIE D'EXPÉRIMENTATION	99
3.2.1 LA GÉOMÉTRIE DE HELE-SHAW	99
3.2.2 CONCEPTION DES GÉOMÉTRIES D'EXPÉRIMENTATION:	105
3.2.3 MISE EN ŒUVRE DE L'ÉCOULEMENT	109
3.2.4 DESCRIPTION D'UNE EXPÉRIENCE :	115
<b>CHAPITRE 4 : RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX</b>	<b>123</b>
4.1 ECOULEMENT DANS LA CELLULE PRINCIPALE	125
4.1.1 ETABLISSEMENT DE LA FORME DE L'INTERFACE	126
4.1.2 INFLUENCE DE LA VITESSE	130
4.1.3 IMPACT DE LA VISCOSITÉ DES FLUIDES	131
4.1.4 IMPACT DU CARACTÈRE VISCOÉLASTIQUE DU FLUIDE	133
4.1.5 IMPACT DE LA TENSION DE SURFACE	140
4.2 ECOULEMENT DANS D'AUTRES GÉOMÉTRIES	145
4.2.1 ECOULEMENT A TRAVERS UNE RESTRICTION	145
4.2.2 EXPÉRIENCES EN CANAL MICROSCOPIQUE (MICROFLUIDIQUE)	154
<b>CHAPITRE 5 : ANALYSE ET DISCUSSION</b>	<b>159</b>
5.1 ANALYSE PRÉLIMINAIRE	161
5.1.1 CALCUL DE LA DÉFORMATION D'UNE "LIGNE" DE FLUIDE	161

5.1.2 ANALYSE DE L'ÉPAISSEUR DU FILM À LA PAROI	164
5.1.3 QUANTIFICATION GLOBALE DE LA DÉFORMATION DE L'INTERFACE	166
5.2 DISCUSSION DE RESULTATS	169
5.2.1 ECOULEMENT EN CELLULE DE HELE-SHAW EN RÉGIME STATIONNAIRE	169
5.2.2 ECOULEMENT EN CELLULE DE HELE-SHAW EN RÉGIME TRANSITOIRE	171
5.2.3 ECOULEMENT EN CELLULE DE FLUIDES VISCOÉLASTIQUES	174
5.2.4 IMPACT DES CONTRAINTES NORMALES SUR LA DÉFORMATION DU PROFIL DE L'INTERFACE : GÉNÉRALISATION	177
5.2.5 COMPARAISON AVEC LES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX	178
5.2.6 EFFETS ÉLONGATIONNELS	180
5.2.7 ECOULEMENTS À TRAVERS DES RESTRICTIONS	180
5.2.8 IMPLICATIONS POUR LES ÉCOULEMENTS DE FLUIDES VISCOÉLASTIQUES EN MILIEUX POREUX	181
<b>CONCLUSIONS</b>	183
<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</b>	187



# Introduction

---

La production d'un gisement pétrolier comprend généralement plusieurs étapes. Après la récupération primaire (qui utilise la pression du gisement comme moteur de la production) et la récupération secondaire (qui utilise l'injection d'eau ou de gaz pour maintenir la pression dans le gisement), la récupération améliorée du pétrole ou récupération tertiaire comprend tous les différents procédés qui peuvent être employés pour modifier la mobilité et/ou la saturation des hydrocarbures dans le gisement. Ces procédés permettent d'extraire entre 5 et 20 % supplémentaires de l'huile en place dans le gisement, en plus des 30 % obtenus en moyenne après les étapes de récupérations conventionnelles.

Les procédés de récupération améliorée sont considérablement plus coûteux que les méthodes de récupération conventionnelle, mais avec le prix du brut avoisinant les 100 \$/baril en 2011, beaucoup de procédés de récupération tertiaire peuvent être considérés comme rentables et le développement et l'optimisation de ces technologies sont jugés comme des investissements importants.

Après les opérations de récupération conventionnelle qui vont contribuer à récupérer l'huile "mobilisable" dans le réservoir, une certaine quantité d'huile résiduelle reste piégée dans la roche par des effets capillaires. Pour pouvoir déplacer ces hydrocarbures restants, il est nécessaire d'utiliser des procédés (et des fluides) pour contrecarrer ces effets ou les diminuer. Du fait des limitations en pression l'augmentation de la viscosité ou la vitesse d'injection pour accroître la récupération ne sont pas des solutions acceptables. Ce qui laisse le plus de marge de manœuvre est la réduction de la tension interfaciale avec l'injection de tensioactifs (surfactants), procédé qui reste relativement coûteux.

Une des autres méthodes de récupération assistée du pétrole (EOR) consiste à injecter dans les puits des solutions aqueuses de polymère comme le polyacrylamide ou le xanthane, pour améliorer le rapport de mobilité entre le fluide injecté et le pétrole qui reste dans le

puits. Ce processus, connu sous le nom "*polymer flooding*" est communément caractérisé par la viscosité à faible gradient de vitesse du fluide injecté, bien que les solutions employées présentent une forte rhéofluidification et également des propriétés élastiques mises en évidence par l'apparition de contraintes normales. Avec l'addition des polymères la viscosité du fluide déplaçant augmente et la conséquence est une amélioration – par une augmentation des forces visqueuses -de la mobilité, effet que ne devrait pas modifier les conditions microscopiques de piégeage dans le gisement. La saturation d'huile résiduelle n'est donc pas affectée de façon appréciable dans le réservoir, mais la quantité de fluide injecté nécessaire pour déplacer l'huile mobilisable est plus faible. En théorie, il n'y a donc pas moyen de modifier la saturation d'huile résiduelle avec l'injection de polymère. Cependant, certaines observations expérimentales récentes, particulièrement des équipes du champ pétrolier de Daqing (Chine) (qui est un des seuls champs où l'injection de polymère a été réalisé à grande échelle depuis une vingtaine d'années), suggèrent que le caractère viscoélastique des solutions de polyacrylamide contribue à améliorer la mobilisation de l'huile piégée à l'échelle microscopique des pores et donc diminue la saturation résiduelle en huile.

Depuis 2000, plusieurs publications de cette équipe ont présenté des expériences de déplacement dans des micromodèles comparant fluide newtonien (glycérine) et fluide viscoélastique (polyacrylamide), des simulations mathématiques de l'écoulement dans des géométries de pore prenant en compte la viscosité, l'élasticité et le caractère rhéofluidifiant des solutions polymériques, ainsi que des analyses basées sur plusieurs années de production. L'ensemble des résultats, bien que souvent peu détaillés, suggère que l'efficacité de déplacement est plus importante pour des polymères viscoélastiques - par rapport à des fluides newtoniens - et augmente au fur et à mesure que l'élasticité augmente. Malheureusement, la complexité des écoulements présentés, ainsi que le peu de détails présentés ou l'analyse un peu confuse des résultats, rendent délicate l'identification et la modélisation des mécanismes physiques à l'œuvre en lien avec des propriétés rhéologiques bien décrites et contrôlées.

L'objectif de ce travail de thèse est de tenter de comprendre comment les conditions de déplacement de l'huile peuvent être modifiées en fonction des caractéristiques bien identifiables de fluides viscoélastiques. Pour cela, nous utilisons des géométries simples mais représentatives du phénomène de déplacement - comme une cellule Hele-Shaw - que nous ferons évoluer ensuite pour nous approcher peu à peu de conditions d'écoulements plus complexes. Dans ces expériences de déplacement immiscible, une huile de viscosité inférieure - pour éviter le phénomène de digitation visqueuse - sera déplacée par un fluide

newtonien de référence et par des fluides viscoélastiques que nous allons choisir, formuler et caractériser. Ces derniers fluides seront tels que nous pourrions contrôler leur caractère élastique et visqueux afin de pouvoir balayer une large gamme de paramètres. A partir des observations expérimentales, nous tenterons de proposer un modèle simple qui prend en considération l'influence des propriétés élastiques des fluides sur les caractéristiques du déplacement.

Le manuscrit est divisé en cinq chapitres. Le chapitre 1 décrit le contexte de la récupération assistée et l'état de l'art concernant les mécanismes physiques impliqués, ainsi que les observations de la littérature suggérant un effet de la viscoélasticité sur la saturation résiduelle d'hydrocarbures. Le chapitre 2 est consacré au rappel de notions importantes concernant la rhéologie et les propriétés des fluides viscoélastiques.

Dans le troisième chapitre, nous décrivons les matériels et méthodes employés, en particulier le choix, la formulation et la caractérisation rhéologique des fluides utilisés dans les expériences de déplacement, les géométries employées, ainsi que la mise en œuvre des expériences de déplacement. Nous aborderons les résultats expérimentaux dans le chapitre 4 avec en premier lieu les expériences de déplacement dans la cellule de Hele-Shaw utilisant divers fluides de propriétés rhéologiques contrôlées, puis la mise en œuvre de restrictions abruptes dans l'écoulement, et enfin la utilisation de microsystemes. Le chapitre 5 sera consacré à la discussion et à l'analyse des observations obtenues afin de proposer un modèle simple prenant en compte les propriétés élastiques des fluides sur la déformation de l'interface de deux fluides en déplacement immiscible.



# **Chapitre 1 :**

## **Contexte et état de l'art**

---



## 1.1 La récupération améliorée du pétrole

La production d'un gisement pétrolier se déroule généralement en trois étapes, dont les deux premières permettent de récupérer en moyenne 30 % des réserves d'hydrocarbures [1]. Ces réserves se trouvent enfouies à plusieurs kilomètres à des températures et des pressions parfois extrêmes.

La première étape de production (ou récupération primaire) consiste à générer au fond des puits de pétrole ou de gaz une pression inférieure à la pression du réservoir. Ainsi sous l'effet de la différence de pression, les hydrocarbures vont se diriger vers le puits et remonter à la surface. Au bout d'un certain temps, la pression du gisement diminue et la différence de pression ne suffit plus à la remontée.

Le taux de récupération primaire se situe autour de 5 % OOIP (OOIP pour Original Oil in Place ou l'huile présente initialement dans le gisement) pour les bruts lourds et peut atteindre 25% OOIP sur certains gisements de pétrole léger, très fluide [1].

On entre alors dans une seconde étape, la récupération secondaire ou IOR (Improved Oil Recovery). On injecte de l'eau ou du gaz à la base du gisement pour balayer le plus de surface possible et pousser l'huile vers les puits de production tout en maintenant la pression dans le réservoir. L'IOR devient insuffisant lorsque le rapport eau injectée/pétrole produit est trop important. La récupération moyenne après cette étape se situe autour de 30 % OOIP.

Une troisième étape dite de Récupération Assistée du Pétrole (Enhanced Oil Recovery : EOR) peut permettre la récupération d'une partie du pétrole restant (entre 5 % et 20 % OOIP), grâce à des méthodes dont la caractéristique principale est de changer les propriétés de mobilité de l'huile dans le réservoir par des procédés thermiques ou chimiques. [1;2]

Ces procédés utilisés en récupération tertiaire sont généralement complexes et coûteux, ce qui ne rend cette étape viable économiquement que dans des conditions de prix du pétrole élevé.

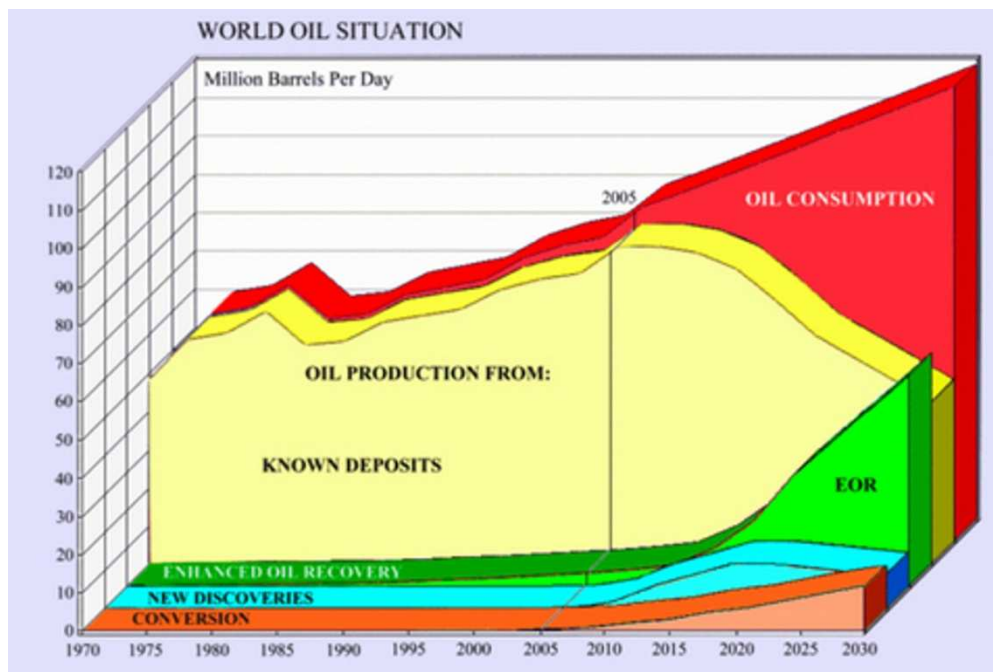
### **1.1.1 Aspect historique :**

Entre octobre et décembre 1973 éclata le premier "choc pétrolier" de l'histoire. Jusqu'aux années 1970, les grandes compagnies pétrolières imposent aux pays producteurs de pétrole des prix faibles où le baril de pétrole vaut moins de 2 \$. Au début des années 1970 la forte demande de pétrole des pays industrialisés et la découverte de nouveaux gisements en Alaska et en mer du Nord (dont les coûts d'exploitation élevés nécessitent une hausse des prix pour être rentables), créent des circonstances favorables aux pays pétroliers pour augmenter les prix.

Un deuxième facteur est le conflit israélo-arabe. Suite à cet événement, le prix du pétrole est multiplié par plus de quatre et passe de 2,59 \$/baril en octobre 1973 à 11,65 \$/baril en décembre 1973, en référence au brut léger arabe [3]. A cette époque, on opérait surtout selon les techniques de récupération primaire, mais à partir du moment où les prix ont augmenté (entre 40 \$ et 65 \$ le baril entre 1974 et 1981) [3], les compagnies ont cherché à mettre au point des techniques de récupération assistée afin d'augmenter le coefficient de récupération. Par la suite, la chute des prix du pétrole dans les années 1980 a rendu non rentable économiquement l'utilisation de ces techniques de récupération améliorée.

Avec un prix moyen du pétrole autour de 65 \$/baril pour l'année 2009, l'EOR redevient maintenant une option raisonnable économiquement. L'augmentation de 1 pour cent du taux de récupération correspond à 2 ans de consommation au rythme actuel. Ces facteurs expliquent pourquoi les estimations des économistes du pétrole pour les années à venir (Figure 1), prédisent à l'EOR un futur plein d'opportunités d'expansion.





**Figure 1:** Consommation d'huile projetée à 2030 et proportions des sources de production estimées. L'EOR représente une fraction importante de l'huile produite dans ces estimations. D'après [4]

## 1.1.2 Aspect technique

Normalement, le pétrole qui ne peut pas être extrait par la récupération primaire ni par la récupération secondaire reste fixé dans la roche par action des forces capillaires (cas de réservoirs de pétrole léger) ou bien du fait des viscosités très élevées (cas des bruts lourds ou des sables bitumineux). C'est à dire, qu'il reste dans le puits une quantité d'huile importante qui est mesurée par une quantité appelée la "saturation d'huile". La récupération tertiaire vise alors à pousser plus efficacement le brut vers les puits producteur.

En général, les méthodes de récupération tertiaire sont divisées en méthodes thermiques (très utilisées et efficaces dans la récupération de bruts lourds) et en méthodes non thermiques (pour la récupération de bruts légers) elles mêmes classées en miscibles, immiscibles et chimiques. [1]

Les méthodes chimiques, bien que relativement peu utilisées à grande échelle jusqu'à maintenant, consistent à injecter dans le puits des formulations chimiques qui ont pour objectif principal d'améliorer la mobilité de l'huile à l'échelle macroscopique et/ou de remobiliser l'huile résiduelle bloquée dans le réservoir en diminuant la tension interfaciale

entre la phase aqueuse et l'huile en place. Ces techniques sont considérées comme des stratégies adéquates pour de nombreux gisements d'huiles légères, mais leur coût est élevé.

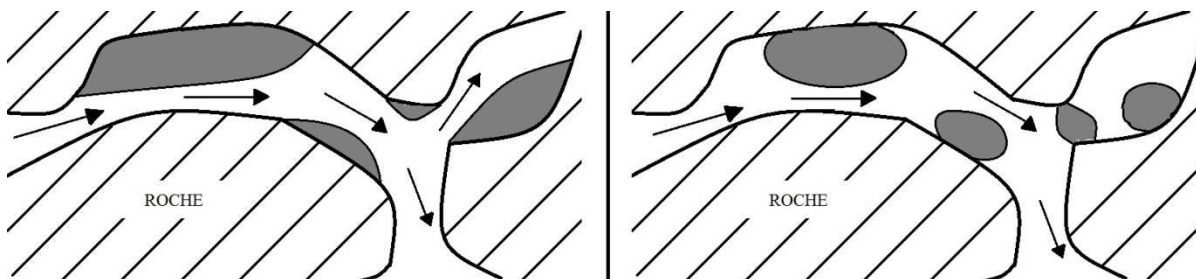
Des formulations très diverses peuvent être utilisées : des polymères ("*polymer flooding*"), des tensioactifs, des solutions micellaires, des alcalins et des mélanges entre ces composants, comme les formulations ASP (ASP pour injection successive d'alcalins, de surfactants et de polymères).

### 1.1.3 Mécanismes physiques liés à la récupération tertiaire

Avec la récupération primaire ou spontanée, on induit un écoulement successif ou simultané d'huile, de gaz et d'eau salée du gisement vers les puits producteurs et la surface. Mais dès que la pression du gisement devient insuffisante, la production diminue et le pétrole résiduel reste piégé dans le gisement. Des méthodes de récupération secondaire entrent alors en jeu, comme l'injection d'eau ou de gaz pour maintenir la pression et déplacer l'huile, ce qui permet d'accroître la production et donc de diminuer la fraction d'huile restant dans le gisement. Toutefois, à un moment donné, cette deuxième étape atteindra un palier et une quantité d'huile résiduelle restera piégée dans le puits.

Outre le pétrole, des quantités importantes d'eau et même de gaz restent piégées. La nature de la roche-réservoir peut avoir une affinité avec le pétrole (dite hydrophobe) ou avec l'eau qui l'accompagne (dite hydrophile) ; cette affinité est plus ou moins marquée selon la composition de la roche. Dans ces conditions, la rétention du pétrole dans la roche est liée aux forces capillaires ; la mobilisation de cette huile résiduelle, implique généralement l'injection de fluides complexes pour vaincre les forces capillaires.

Une représentation simplifiée de cette situation implique au moins une surface solide (la roche) et deux fluides immiscibles (pétrole et eau) dont les quantités sont non négligeables. En condition d'équilibre, une goutte de pétrole reste piégée par l'eau qui est autour d'elle par l'effet de la **capillarité**. Cependant, comme le montre la Figure 2, les conditions de piégeage sont différentes selon la nature de la roche et dépendent des **tensions interfaciales** entre les trois phases qui coexistent. Pour caractériser cette affinité, nous pouvons mesurer un **angle de contact** entre ces phases, par exemple entre la goutte de pétrole et la surface solide. Par la suite, nous aborderons en détail toutes ces notions qui expliquent comment une goutte d'huile est piégée dans des conditions statiques.



**Figure 2 :** Schéma des portions de roche partiellement remplies d'eau et de gouttes de pétrole. À gauche, dans une roche qui a une affinité au pétrole. À droite, dans une roche qui a une affinité à l'eau. L'eau injectée (de gauche à droite) trouve des conditions plus ou moins favorables pour déplacer le pétrole piégé selon cette affinité.

Pour récupérer le pétrole qui est piégé dans la roche, il est nécessaire de mettre le système en mouvement (Figure 2). Initialement il existe dans la roche une fraction de chaque fluide définie comme la **saturation**, qui va diminuer au fur et à mesure de l'injection d'un fluide extérieur (par exemple de l'eau). L'injection d'eau ou de gaz lors de la récupération secondaire et de formulations chimiques au cours de la récupération tertiaire modifie considérablement les équilibres entre ces fluides à différentes échelles, de même que les propriétés des écoulements.

Chaque roche se comporte d'une façon différente lors du passage des fluides et sa résistance à l'écoulement est inversement proportionnelle à une caractéristique qui est la **perméabilité**. Chaque fluide a de même une capacité à s'écouler lors du passage à travers la roche qui est représentée par la **mobilité**. Dans une situation idéale, un système avec une haute perméabilité, ou avec une mobilité de la phase huile (pétrole) élevée, conduira à une réduction significative de sa **saturation** dans la roche. Ces concepts sont abordés plus en détail dans la suite du manuscrit.

Pour mesurer l'efficacité liée à ces processus de déplacement de l'huile par une phase aqueuse (avec ou sans additifs) en extraction pétrolière, différentes échelles peuvent être considérées. À l'échelle macroscopique, les facteurs qui affectent le déplacement dépendent des caractéristiques de la roche (composition, porosité, hétérogénéités, etc.) ainsi que du rapport de mobilité entre le fluide qui déplace et le fluide qui est déplacé [2]. À l'échelle du pore, plusieurs facteurs interviennent, dont la mouillabilité de la roche, les forces visqueuses et les forces capillaires.

En conclusion, après la récupération secondaire, une quantité d'huile (saturation résiduelle) reste piégée dans le réservoir. Certaines quantités d'huile restent sur la paroi des pores, d'autres bloquent certains pores – complètement ou partiellement – avec l'apparition de

chemins préférentiels. La récupération tertiaire peut intervenir au niveau de l'échelle du pore sur les équilibres entre la mouillabilité de la roche, les forces capillaires (dépendant des tensions interfaciales entre les phases) qui tendent à piéger l'huile, et les forces visqueuses qui contribuent à la mobiliser afin de diminuer cette saturation résiduelle. La compréhension des phénomènes de piégeage et d'écoulement diphasique dans un milieu poreux est nécessaire pour optimiser les processus de récupération améliorée du pétrole.

### 1.1.3.a Piégeage d'une goutte dans un système diphasique : forces capillaires

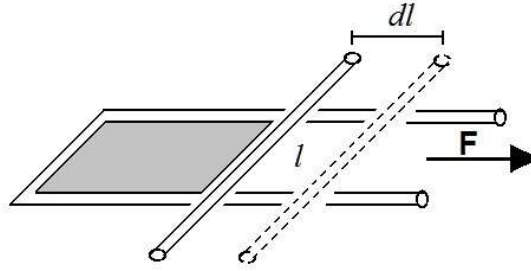
Une goutte de pétrole reste piégée dans une roche par effet des forces capillaires. Pour comprendre la nature de ces forces, il faut d'abord définir la grandeur physique qui est à son origine : la tension superficielle.

#### *Tension superficielle :*

D'un point de vue physique, la tension superficielle  $\sigma$  est la force de tension appliquée par les molécules placées au sein d'un fluide sur les molécules qui sont placées à sa surface du fait de la différence entre les forces de cohésion sur chaque catégorie de molécules. En effet, une molécule au sein du fluide bénéficie des attractions de toutes ses voisines, alors qu'une molécule située à la surface bénéficie seulement de la moitié de ces attractions. Les forces d'attraction augmentent en même temps que la tension superficielle.

Lorsqu'un système est constitué de deux phases condensées, on parle de **tension interfaciale** (nous allons garder par la suite la même dénomination que pour la tension superficielle) qui peut être considérée comme une mesure de l'immiscibilité entre deux liquides ou bien comme la force nécessaire pour créer de la surface entre ces deux liquides immiscibles. La tension interfaciale traduit donc l'amplitude des forces d'attraction internes ; plus ces dernières sont élevées, moins les fluides vont vouloir « partager » l'interface.

Une définition mécanique peut être proposée (Figure 3) : une expérience classique pour définir la tension superficielle consiste à représenter un film de liquide supporté par un cadre rectangulaire dont l'un des côtés est mobile.



**Figure 3 :** Expérience mettant en évidence le phénomène de tension superficielle [5]

Si l'on relâche la barre mobile, celle-ci se déplace de façon à diminuer la surface du film liquide ; pour maintenir la barre en place il faut exercer une force  $F$  proportionnelle à la largeur  $l$  du cadre. Pour accroître la surface d'une quantité  $dS = 2dl$ , l'énergie nécessaire est le travail  $W$  de la force  $F$  :

$$dW = Fdl = 2\sigma dl = 2\sigma dS \quad (1.1)$$

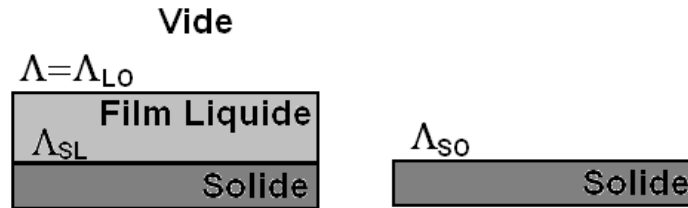
La force de traction agissant sur un élément de surface situé dans un plan tangent à la surface qui s'oppose à l'augmentation de celle-ci est traduite par la tension superficielle entre le liquide et l'air. Quand deux phases (gaz - liquide, liquide - liquide, gaz - solide ou liquide - solide) sont en contact, les forces entre les molécules le long de cette interface sont déséquilibrées, et ce déséquilibre engendre une énergie de l'interface.

La valeur de la tension superficielle à 20 °C de l'eau est de  $72,8 \pm 0,1$  mN/m, celle d'une huile légère se situe autour de 50 mN/m. Dans un gisement la tension interfaciale entre une saumure (phase aqueuse) et l'huile est de l'ordre de 30-40 mN/m [6].

### ***Mouillabilité et angle de contact :***

Comme nous l'avons précisé dans le paragraphe précédent, une valeur élevée de tension interfaciale est synonyme de haute immiscibilité entre deux phases liquides. Cependant, il existe aussi un paramètre géométrique pour mesurer l'affinité entre la phase solide et une phase liquide, à savoir l'angle de contact  $\theta$ .

Pour commencer, demandons nous si l'étalement d'une goutte de liquide est favorable sur une surface solide (Figure 4) : il faut d'abord comparer l'énergie de la surface solide ( $E_s$ ) dans le cas où elle est seule  $E_s = \Lambda_{s0}$  ou recouverte d'une couche de liquide  $E_{SL} = E_{SL}(\Lambda_{SL})$ , de telle façon que l'interaction entre les deux interfaces soit négligeable (film macroscopique).

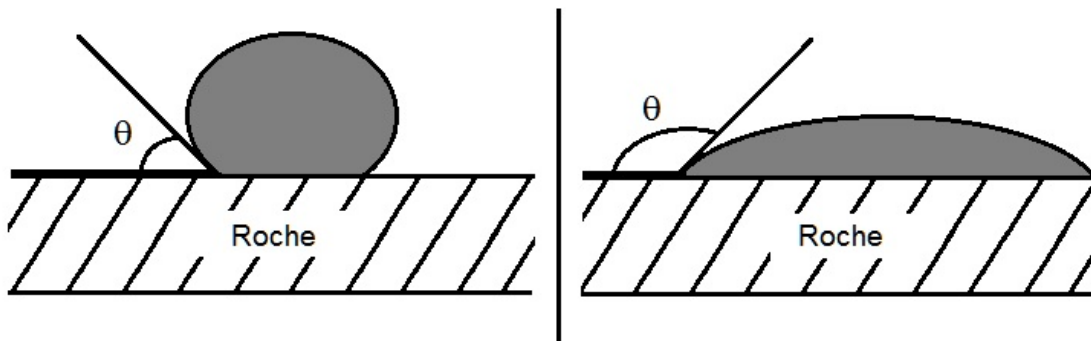


**Figure 4 :** Schéma des énergies interfaciales pour une surface recouverte ou non de liquide

avec :  $\Lambda_{LO}$  = Énergie interfaciale entre le liquide et le vide,

À gauche, l'énergie de surface est  $E_{SL} = \Lambda_{LO} + \Lambda_{SL}$  et à droite  $E_S = \Lambda_{SO}$

La présence du film est favorable si  $E_{SL} < E_S$ . Introduisons le paramètre d'étalement  $So = E_S - E_{SL}$  ; si  $So > 0$ , la présence du film est favorable et représente une surface complètement mouillée. Si  $So$  est négatif, le film ne s'étale pas et il en résulte une calotte sphérique qui s'appuie sur le substrat avec un angle de contact ( $\theta$ ) : on parle d'une mouillabilité partielle. [5]



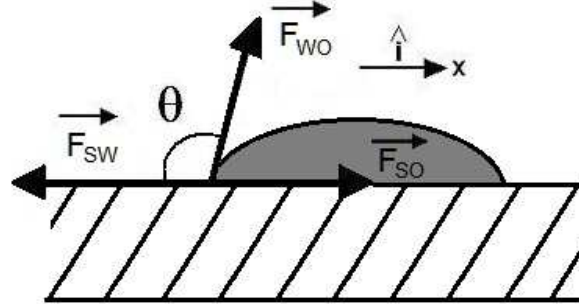
**Figure 5 :** Deux gouttes d'huile dans l'eau. A gauche, sur une surface hydrophile, à droite sur une surface hydrophobe

La valeur de l'angle de contact permet d'identifier quelle phase « mouille » une roche dans un gisement. Dans le cas de la Figure 5, si l'angle est inférieur à  $90^\circ$ , on dit que l'eau mouille la surface ; dans le cas contraire, c'est le brut qui mouille la surface.

Même si dans la plupart des cas, les roches sont naturellement plus mouillables à l'eau, la mouillabilité est affectée de façon assez importante pendant le procédé, du fait de l'adsorption et de la désorption des constituants de l'huile et des additifs utilisés.

Pour le calcul de l'angle de mouillage, nous prenons une goutte d'un fluide (par exemple de l'huile, que nous allons noter par la suite avec le sigle O, de l'anglais Oil) qui est

immergée dans un autre fluide immiscible (par exemple de l'eau, que nous allons noter par la suite avec le sigle W, de l'anglais Water). En présence d'une surface solide S on a un équilibre de forces, relié aux différentes tensions interfaciales (Figure 6).



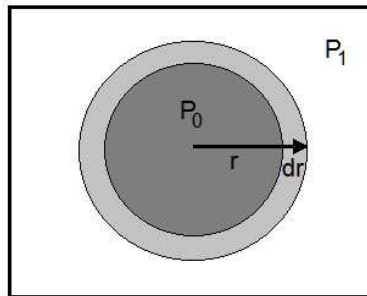
**Figure 6 :** Équilibre des forces dans un système Eau(W)-Huile(O)-Roche(S) mettant en évidence les forces entre les trois phases.

L'équilibre des forces appliquées le long de la ligne triple, et projeté sur  $\hat{i}$  donne l'équation d'Young [5] :

$$\sigma_{sw} + \sigma_{so} = \sigma \cos \theta \quad (1.2)$$

### Capillarité

D'un point de vue simple, la capillarité est le phénomène physique par lequel un liquide tend à monter le long d'un tube étroit ou à imbiber spontanément un corps poreux. Ces effets capillaires résultant du saut de pression lorsqu'une interface courbe est traversée. Prenons par exemple une goutte d'huile de rayon  $r$  (phase 0) entourée d'eau (phase 1) et supposons que l'on veuille faire grossir cette goutte (Figure 7) : pour cela, il faut déplacer l'interface eau/huile :



**Figure 7 :** Goutte d'huile dans l'eau. Le phénomène de surpression se produit entre les deux phases

La déformation de la goutte implique de fournir un travail associé à la variation de volume de la goutte, un travail associé à la variation de volume de l'eau qui l'entoure et une variation d'énergie interfaciale entre les deux liquides :

$$dW = -P_0 dV_0 - P_1 dV_1 + \sigma dA \quad (1.3)$$

A l'équilibre  $dW = 0$  . En outre on a :

$dV_0 = -dV_1 = dV$  . Pour une sphère on a :  $dV / dA = 2r$  et on obtient  $\Delta P = 2\sigma / r$  . Cette différence de pression est la surpression dans la goutte d'huile et montre que d'autant que la tension interfaciale est grande une goutte piégée dans un milieu aqueux est plus difficile à déplacer car pour ce faire il faudra d'abord la déformer. Cette relation écrite d'une façon plus générale est connue comme l'équation de Young-Laplace [5;7] :

$$\Delta P = \sigma \left( \frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \quad (1.4)$$

ou  $r_1$  et  $r_2$  sont les deux rayons de courbure principaux associés à l'interface.

Une fois connus les mécanismes selon lesquels une goutte d'huile peut être piégée dans un puits et les grandeurs physiques qui caractérisent les conditions de piégeage, nous pouvons détailler les conditions de déplacement de fluides immiscibles.

### 1.1.3.b Écoulement simultané de fluides immiscibles en milieux poreux

Tout fluide qui s'écoule librement dans un espace confiné est soumis à des forces qui favorisent ou qui retardent ledit écoulement. La force motrice par excellence est la chute de pression ( $\Delta P$ ) imposée au fluide et réciproquement, la principale force retardatrice est la perte d'énergie due à la friction entre le fluide et les parois de l'espace confiné.

Cependant, l'écoulement d'un fluide dans un milieu poreux présente une complication supplémentaire représentée par le solide qui doit être traversé. Soumis à la même chute de pression imposée, un fluide qui s'écoule dans un milieu poreux composé de sable se déplace différemment si le milieu poreux est composé d'argile. La loi de Darcy [8] exprime la relation entre la vitesse moyenne d'écoulement du fluide ( $V$ ) et la perte de charge par unité de longueur ( $dP/dl$ ) en fonction de la résistance inhérente à l'écoulement du fluide



qui est sa viscosité ( $\eta$ ) et en fonction d'une caractéristique propre au matériau traversé qui est définie comme la perméabilité ( $k$ ) de ce matériau.

$$V = \frac{k}{\eta} \frac{dP}{dl} \quad (1.5)$$

La perméabilité est donc une caractéristique liée à un matériau solide – dans notre cas la roche – et représente la capacité de ce matériau à être traversé par un fluide sans altérer sa structure interne. Si la quantité de fluide – proportionnelle à sa vitesse moyenne – qui peut traverser le matériau est importante, le solide est dit perméable ; dans le cas contraire, il est dit peu perméable, voire imperméable. Sa valeur est souvent déterminée expérimentalement suivant la loi de Darcy.

Si nous ajoutons un deuxième fluide immiscible, les conditions d'écoulement seront modifiées en fonction des affinités entre chaque fluide et le milieu poreux qui sera traversé. Avant d'entreprendre la résolution de ce cas particulier, il est judicieux de définir le terme de saturation que nous avons introduit précédemment.

Les **saturation**  $S_i$  d'huile ( $S_o$ ) et d'eau ( $S_w$ ) représentent respectivement les fractions volumiques occupées par chaque fluide dans les pores.

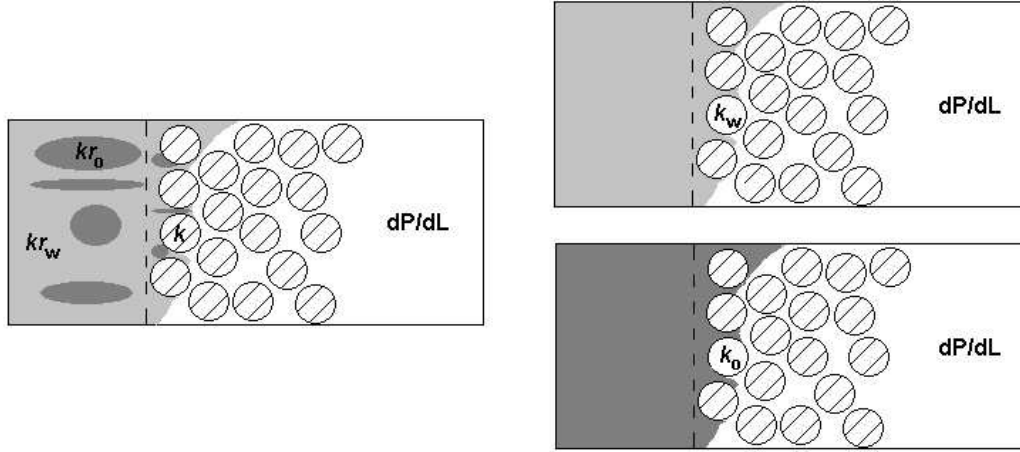
$$S_w = \frac{W}{W + O} \Big|_{pore} \quad (1.6)$$

$$S_o = \frac{O}{W + O} \Big|_{pore} \quad (1.7)$$

Souvent, ces dernières sont mesurées avant et après l'application d'un processus de récupération pour obtenir une mesure de son efficacité. En particulier, la saturation d'huile résiduel ( $S_{or}$ ) est un paramètre largement utilisé pour caractériser l'efficacité des processus de récupération amélioré.

En pratique, il est possible de déterminer la variation de certaines caractéristiques (la pression capillaire, la tension interfaciale et la longueur caractéristique du milieu qui, dans notre cas, est le diamètre de pore) en fonction des saturations, avec des outils d'analyse connus, comme les courbes de drainage-imbibition [6].

Ainsi, quand deux fluides traversent un même solide, nous pouvons définir une **perméabilité partielle**  $k_i$  de chaque fluide. Cette grandeur représente la facilité à s'écouler de ce liquide en particulier sous un gradient de pression imposé dans l'écoulement global.



**Figure 8 :** La perméabilité relative d'un fluide dans un écoulement multiphasique (à gauche, gris obscur pour l'huile et gris clair pour l'eau), peut être exprimée en fonction des perméabilités partielles des fluides en écoulement simple (à droite).

Prenons l'exemple d'une certaine quantité d'huile (O) et d'eau (W) transportées dans un matériau solide de perméabilité  $k$  (Figure 8).  $k_w$  et  $k_o$  seront respectivement les perméabilités de la roche si ces deux fluides s'écoulent individuellement sous un gradient de pression  $dP/dL$ .

$$k_i = \frac{V_i \eta_i}{\left( \frac{dP}{dl} \right)} \quad (1.8)$$

Cependant, quand ces deux fluides s'écoulent ensemble, et, pour garder une référence unique (la perméabilité absolue de la roche), il est courant d'utiliser la **perméabilité relative**  $kr_i$  représentée par le rapport entre la perméabilité partielle ( $k_i$ ) d'un fluide à une saturation particulière ( $S_i$ ), et la perméabilité absolue du fluide ( $k$ ), tel que:

$$kr_i = \frac{V S_i \eta_i}{k \left( \frac{dP}{dl} \right)} \quad (1.9)$$

Il est important de noter que, dans un gisement pétrolier, la géométrie des pores, la viscosité des fluides, et les forces en présence jouent un rôle important dans la perméabilité relative, et cette caractéristique impacte la mobilité des fluides dans le puits.

Cette **mobilité**  $M_i$  est définie comme la relation entre la perméabilité relative et la viscosité du fluide ; elle représente la fluidité d'une phase dans un milieu poreux particulier, c'est-à-dire sa facilité à s'écouler dans ce milieu.

$$M_i = \left( \frac{kr_i}{\eta_i} \right) \quad (1.10)$$

Comme cette relation apparaît quand deux (ou plusieurs) fluides s'écoulent, dans le domaine de la récupération améliorée, les processus de récupération sont caractérisés en fonction du ratio de mobilité  $M$  qui est la relation de mobilité entre le fluide qui déplace (fluide aqueux) et celle du fluide déplacé (huile) :

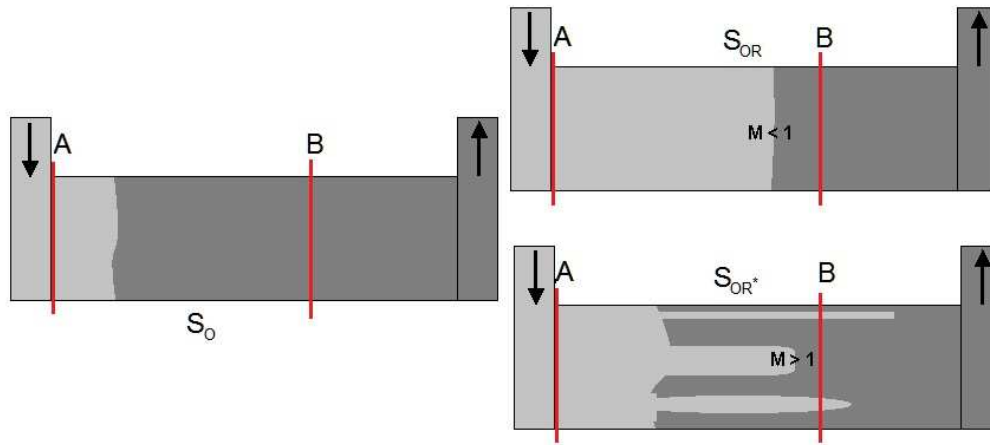
$$M = \frac{\left( \frac{kr_w}{\eta_w} \right)}{\left( \frac{kr_o}{\eta_o} \right)} \quad (1.11)$$

Si  $M$  est inférieur ou égal à 1, la phase plus « lente » ou moins fluide est celle qui déplace l'autre, ce qui permet un balayage efficace et donc une récupération importante. Inversement, si la phase qui déplace est plus « rapide » ( $M > 1$ ), le phénomène de digitation visqueuse apparaît et rend le balayage inefficace, menant à une récupération très faible. Ce phénomène trouve son origine dans les variations de perméabilité, et peut être relié à l'instabilité de Saffman Taylor [9] qui survient dans une géométrie où la relation largeur/épaisseur est élevée, par exemple la géométrie de Hele Shaw.

Dans les conditions plus simples de déplacement diphasique (absence de milieux poreux) cette instabilité se produit spécifiquement au niveau de l'interface de deux fluides immiscibles quand la viscosité du fluide déplaçant est inférieure à celle du fluide déplacé. Elle se manifeste par la formation de doigts de fluide moins visqueux qui pénètrent à l'intérieur du fluide le plus visqueux.

Avant l'apparition de l'instabilité, la forme de l'interface est normalement maintenue par la tension interfaciale. Cependant, quand la surpression générée au niveau de l'interface est suffisamment grande, l'interface se déforme et les doigts apparaissent. Quand l'instabilité se déclenche, des doigts multiples commencent à évoluer, jusqu'à former un doigt principal (au détriment des multiples) si la vitesse est suffisamment élevée. Dans le cas d'une cellule Hele Shaw rectangulaire, le doigt principal occupe la moitié du canal [10].

Les situations de balayage efficace et de l'apparition de la digitation visqueuse sont représentées sur la Figure 9.



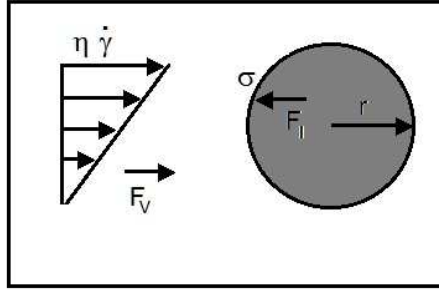
**Figure 9 :** Schéma d'un balayage avec des conditions de mobilité différentes. Une relation de mobilité  $M > 1$  donne lieu au phénomène de digitation visqueuse.

À gauche, dans la situation initiale avec une saturation initiale en huile  $S_o$  entre A et B. Si  $M \leq 1$ , le balayage efficace permet de réduire de façon importante la saturation d'huile ( $S_{OR}$ ) dans le secteur AB. Cependant, si  $M > 1$ , le balayage déficient ne permet pas de réduire de façon significative la saturation d'huile dans le secteur AB ( $S_{OR}^*$ ).

Le fait de déplacer sélectivement l'huile piégée d'un puits et d'analyser l'efficacité de cette extraction prenant en compte chaque phénomène de façon indépendante est une tâche complexe. Mais il est possible d'établir une relation entre les forces qui entrent en jeu à l'échelle microscopique et l'efficacité du déplacement microscopique, ce qui sera fait dans la suite de ce chapitre.

### 1.1.3.c Équilibre entre forces visqueuses et forces capillaires :

Reprenons l'exemple d'une goutte d'huile entourée d'eau, où cette fois, l'eau s'écoule sur la longueur d'un canal, ce qui est à l'origine d'un cisaillement simple sur la goutte (Figure 10) :



**Figure 10** : Représentation des forces agissant quand un fluide s'écoule autour d'une goutte immiscible

La phase aqueuse en écoulement exerce une contrainte visqueuse de magnitude  $\eta \dot{\gamma}$  - avec  $\dot{\gamma}$  le gradient de vitesse - sur la goutte qui va réagir à cette déformation avec une réponse élastique proportionnelle à l'énergie de surface de la goutte (fonction de la déformation  $\varepsilon$ )  $E = 2\pi r^2 \varepsilon^2 \sigma$ . Les forces résultantes sont les forces visqueuses ( $F_v = \pi r^2 \eta \dot{\gamma}$ ) liées au fluide déplaçant et les forces interfaciales ( $F_\sigma = 4\pi r \varepsilon \sigma$ ) qui retiennent le fluide déplacé dans une condition d'équilibre  $F_v = F_\sigma$  telle que la déformation peut être décrite au travers d'une construction adimensionnelle de la forme :

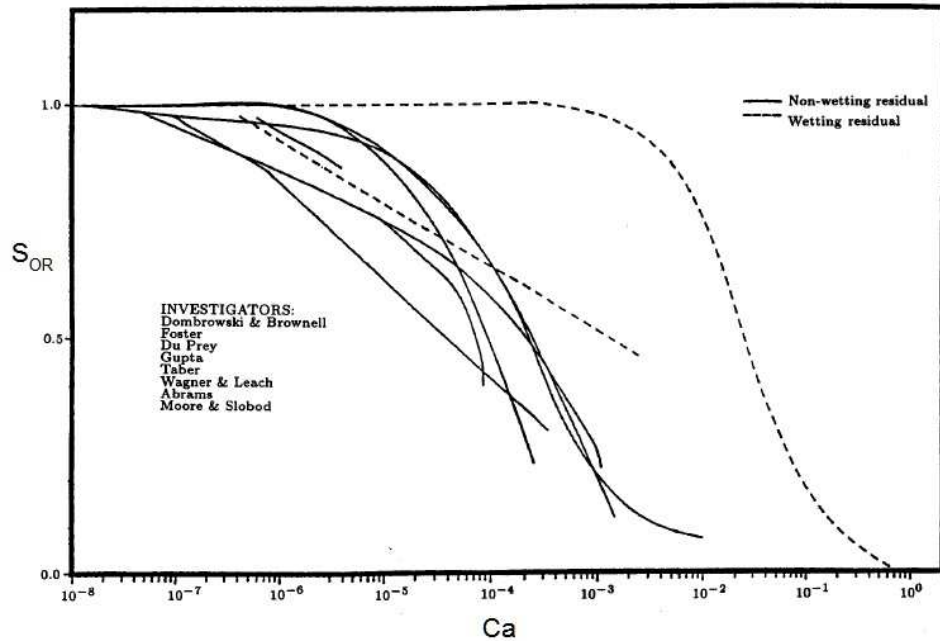
$$\varepsilon \propto \eta \dot{\gamma} r / \sigma \quad (1.12)$$

Cet équilibre des forces visqueuses et capillaires peut être représenté par un nombre adimensionnel : le nombre capillaire ( $Ca$ ), selon l'expression suivante :

$$Ca = \frac{\bar{V} \cdot \eta}{\sigma} \quad (1.13)$$

avec  $\bar{V}$  = Vitesse moyenne d'écoulement

Le nombre capillaire permet une unification de la description de différents systèmes eau/huile/roche où les forces visqueuses et les forces capillaires entrent en jeu lors du déplacement de l'huile. Une approche de la récupération assistée du pétrole par ce nombre a présenté certains succès, même si divers phénomènes sont négligés [11]. D'un point de vue pratique, si le nombre capillaire est au-dessous de  $10^{-6}$ , la récupération additionnelle est presque nulle. En revanche, si le nombre capillaire est au-dessus de  $10^{-3}$ , la récupération peut être proche de 100 % [12;13]. (voir Figure 11)



**Figure 11 :** Relation entre la saturation résiduelle et Ca. D'après [12]

On aurait donc tendance à vouloir augmenter la viscosité ou la vitesse pour accroître la récupération. Cependant, l'augmentation de la vitesse du fluide déplaçant a pour limite l'apparition du phénomène de digitation visqueuse (problème de mobilité, cité auparavant) ; l'augmentation de la viscosité d'un autre côté sera limitée par la pression nécessaire pour pomper le fluide déplaçant. Ce qui laisse le plus de marge de manœuvre est la réduction de la tension interfaciale avec l'utilisation de tensioactifs.

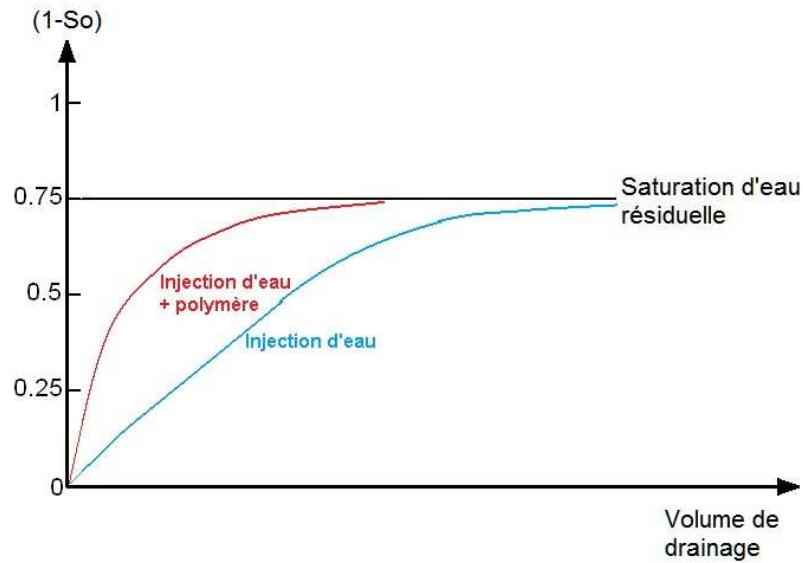
En conclusion, quelle que soit la méthode utilisée dans la récupération améliorée du pétrole, il faudra s'efforcer d'augmenter les forces visqueuses ou de diminuer les forces capillaires (ou bien les deux), en affectant le moins possible le coût de la production.

## 1.2 EOR Chimique, injection de polymères (*polymer flooding*)

L'EOR chimique, utilisé principalement dans les gisements de bruts légers, consiste en l'utilisation de formulations qui permettent de déplacer l'huile en diminuant le rapport de mobilité (échelle macroscopique), et/ou en diminuant la tension interfaciale pour réduire les forces capillaires qui piègent l'huile résiduelle (échelle microscopique). Des formulations très diverses peuvent être utilisées : des polymères, des tensioactifs, des solutions micellaires, des alcalins et des mélanges entre ces composants, comme les formulations ASP (injection successive d'alcalins, de surfactants et de polymères).

Un des procédés les plus simples est l'addition de polymères pour augmenter la viscosité de l'eau à injecter, procédé connu comme le « *polymer flooding* ». L'injection d'un mélange eau-polymères va simplement augmenter la viscosité de l'eau d'injection (*water flooding*) afin d'améliorer le rapport de mobilité par une augmentation des forces visqueuses, même si l'efficacité au niveau microscopique (mobilisation de l'huile piégée) n'est théoriquement pas modifiée. En effet, l'augmentation de viscosité n'est théoriquement pas suffisante à elle seule pour contrebalancer les forces capillaires et contribuer au dépiégeage des gouttes d'huiles résiduelles.

La mobilité  $M$  du système est effectivement diminuée comme on peut le constater dans l'équation (1.11), ce qui favorise le déplacement ; cependant, les conditions de piégeage (relatives à la tension interfaciale  $\sigma$  entre l'huile et la phase aqueuse) sont théoriquement équivalentes à une récupération secondaire (injection d'eau). La saturation d'huile résiduelle n'est donc pas diminuée dans le puits, mais la quantité de fluide nécessaire pour la déplacer est plus faible. Voyons cela avec un exemple (Figure 12)



**Figure 12 :** Dépendance typique de la saturation résiduelle d'huile en fonction du volume du fluide déplaçant injecté (volume de drainage) pour l'eau et une formulation eau-polymère de viscosité supérieure

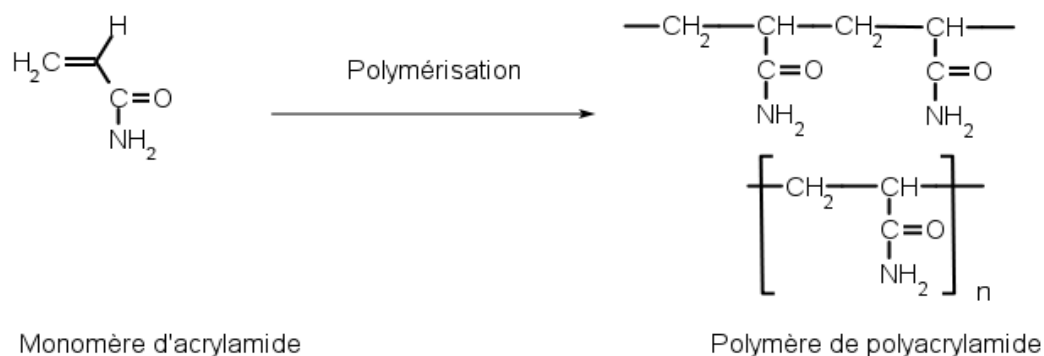
Avec l'injection d'eau, la quantité maximale d'huile à déplacer sera atteinte avec un certain volume injecté. La même quantité d'huile sera déplacée avec un volume inférieur d'une formulation eau-polymère dont la viscosité est entre 10 et 100 fois plus grande par rapport à celle de l'eau. En théorie, il n'y a pas moyen de modifier la saturation d'huile résiduelle avec l'injection de polymère.

Les échecs le plus souvent rencontrés dans les opérations de *polymer flooding* sont la perte du polymère (par adsorption dans la roche) et la dégradation de la formulation dépendant des contraintes de cisaillement élevées pendant l'injection. Les caractéristiques idéales pour l'utilisation de *polymer flooding* sont des gisements de haute perméabilité et à faible contenu d'argile avec une viscosité de l'huile ne dépassant pas les 0,1 mPa.s in situ [14]. Par ailleurs, dans les cas où la perméabilité du gisement est variable, ce type de formulation gomme les effets de contraste de la perméabilité, en évitant l'apparition de chemins préférentiels. Il faut retenir que les conditions de cisaillement dans un puits peuvent aller au-dessus de  $100 \text{ s}^{-1}$  pendant le drainage, étant  $10 \text{ s}^{-1}$  une valeur moyenne typique [15;16], et même au-delà de  $1000 \text{ s}^{-1}$  au niveau de l'injection [17].



### 1.2.1 Polymères pour le *polymer flooding*

Les polymères communément utilisés pour augmenter la viscosité de la phase aqueuse sont les polyacrylamides (Figure 13) et les polysaccharides. Les polyacrylamides ( $-\text{CH}_2\text{CHCONH}_2-$ ) sont des polymères synthétiques (polymérisation de l'acrylamide) solubles en phase aqueuse, qui peuvent être linéaires ou réticulés, avec des masses moléculaires comprises généralement entre quelques milliers et  $20 \cdot 10^6$  g/mol [18].



**Figure 13 :** Monomère d'acrylamide et molécule de polyacrylamide

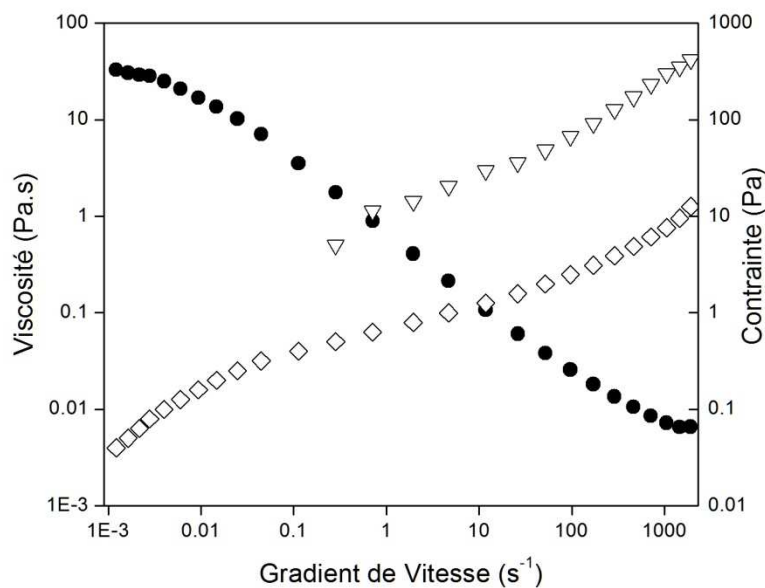
Les polysaccharides sont des biopolymères versatiles dotés de propriétés structurales remarquables grâce à leur particularité qui est de former des mailles tridimensionnelles – ils sont par exemple susceptibles de former des gels en solution aqueuse. Une bonne partie des polysaccharides à usage industriel provient des fermentations microbiennes ; le plus utilisé en EOR est le xanthane.

Au niveau des polyacrylamides, en solution aqueuse, une fraction de l'acrylamide peut être hydrolysée pour produire de l'acide acrylique ; cela se traduit par une augmentation de son pouvoir viscosifiant dans l'eau sans électrolytes, mais sa viscosité diminue d'une manière abrupte dans l'eau salée [15]. En effet, les polyacrylamides sont susceptibles de voir leurs caractéristiques rhéologiques modifiées si les concentrations de sel sont élevées (plus de 1 % de sel, comme c'est le cas dans les saumures) mais aussi par dégradation mécanique due aux cisaillements importants (passage au travers d'une valve ou au travers des pores de la roche).

Par ailleurs, sur une même concentration, les polyacrylamides de haute masse moléculaire donnent des solutions plus visqueuses et plus résistantes à la perte de viscosité

par effet du sel, de pH et de la température ; cependant, ils sont plus sujets à la dégradation mécanique.

Les concentrations de polyacrylamide (PAM) classiquement utilisées se situent entre 200 ppm et 2000 ppm (PAM 30 % hydrolysé). Examinons rapidement une courbe d'écoulement correspondant à une de ces conditions extrêmes. Deux faits sont marquants : *primo*, la viscosité de la formulation décroît rapidement avec l'augmentation du taux de cisaillement – la solution est rhéofluidifiante –, *secundo*, une composante élastique non négligeable sous la forme de la première différence de contrainte normale ( $N_1$ ) apparaît déjà quand le gradient de vitesse est de  $1 \text{ s}^{-1}$ . (Figure 14).



**Figure 14:** Propriétés rhéologiques d'une formulation utilisée en *polymer flooding*. La viscosité (●), la contrainte normale ( $\nabla$ ) et la contrainte tangentielle ( $\diamond$ ) en fonction du gradient de vitesse pour une solution aqueuse avec 2000 ppm de FLOPAM (Polyacrylamide hydrolysé SNF Floerger®)

Nous reviendrons plus tard sur l'interprétation de ce rhéogramme, après avoir développé les concepts nécessaires de rhéologie.

Le xanthane provient de la fermentation du *xanthomonas campestris*, il s'agit d'un polysaccharide exocellulaire avec des masses moléculaires autour de 1 million g/mol. Sa structure est une séquence d'unités monomériques covalentes qui composent la chaîne principale avec des liens covalents qui ne sont pas très flexibles, limitant les chaînes à adopter à certaines orientations seulement, ce qui attribue au polymère une rigidité

particulière [19]. Cette rigidité constitue la caractéristique qui le rend utile à l'EOR, puisque il est très résistant à la dégradation mécanique, et lui permet de maintenir une viscosité élevée dans des gisements à haute salinité [20]. Cependant, dans des gisements où la densité de sel est très basse, son pouvoir viscosant par rapport aux polyacrylamides est plus faible.

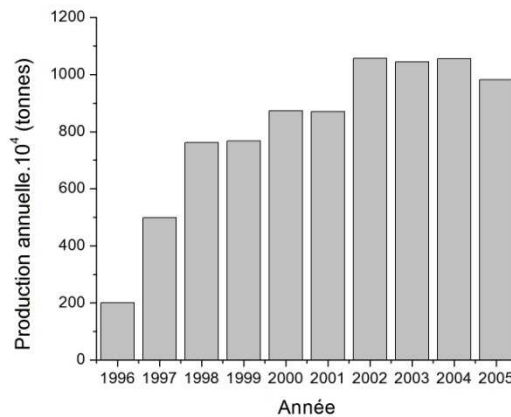
Cela dit, les polysaccharides sont plus stables aux hautes concentrations de sel et résistants aux taux de cisaillement élevés. Néanmoins, la dégradation biologique et leur coût important ont limité leur utilisation par rapport aux polyacrylamides. Les polyacrylamides sont aussi résistants aux températures modérées – bien qu'ils puissent commencer à précipiter dans des eaux salées près de 80 °C –, tandis que le xanthane commence à être dégradé autour de 90 °C. Enfin, les polyacrylamides sont souvent plus sensibles aux problèmes d'adsorption à la paroi du gisement.

Le xanthane, contrairement au polyacrylamide, est un polymère rhéofluidifiant qui ne présente pas de contraintes normales significatives, comme on le montrera un peu plus loin (Chapitre 3) [21].

### 1.2.2 Efficacité du polymer flooding

Depuis les premières études sur la récupération assistée par injection de polymères, relativement peu de gisements ont utilisé le *polymer flooding* à grande échelle. La Chine est un des seuls exemples, avec le gisement de Daqing, où la récupération tertiaire par injection de polymère est pratiquée continûment depuis 1996. Cette technique permet actuellement de récupérer 11 % d'huile en plus par rapport au taux de récupération primaire [22].

Un recul d'une dizaine d'années sur cette technologie fait du gisement de Daqing une source importante d'information et démontre le succès du procédé. La production en récupération tertiaire est passée de 2 millions de tonnes par an en 1996 à un maximum de 10,57 millions de tonnes par an en 2002 [23]. Entre 2002 et 2007, la production a gardé une valeur moyenne de 10 millions de tonnes par an (Figure 15).



**Figure 15 :** Évolution de la production dans le gisement de Daqing avec l'utilisation de *polymer flooding* entre 1996 et 2005. D'après [22].

## 1.3 Viscoélasticité et récupération améliorée du pétrole

Alors que l'augmentation de production en *polymer flooding* est en théorie uniquement liée à l'amélioration du rapport de mobilité due à l'accroissement de la viscosité du fluide pousseur, certaines observations expérimentales récentes, particulièrement des équipes de Daqing, suggèrent que le caractère viscoélastique des solutions de polyacrylamide contribue à améliorer la mobilisation de l'huile piégée à l'échelle microscopique des pores et donc diminue la saturation résiduelle en huile.

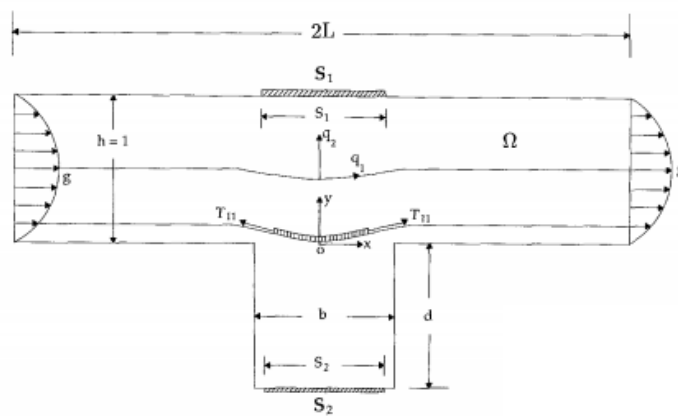
Le terme « viscoélasticité » est cependant peu précis, en effet, l'élasticité d'une solution polymérique issue de la flexibilité des chaînes de polymère en solution est à l'origine de caractéristiques telles que la viscosité élongationnelle et la première différence de contraintes normales. La complexité introduite par ces propriétés non newtoniennes des fluides déplaçants nous oblige à analyser d'abord les différents effets produits par l'écoulement des fluides viscoélastiques en conditions plus simples, c'est à dire en

écoulement monophasique et aussi en conditions de déplacement instable (digitation visqueuse).

### 1.3.1 Effets de la viscoélasticité en écoulement monophasique

L'écoulement des fluides viscoélastiques à travers des milieux poreux et dans des conditions d'élongation (contraction ou expansion) mettent en évidence des effets qu'on ne trouve pas avec un fluide newtonien. Dans le cas d'un écoulement en milieu poreux, l'analogie de la loi de Darcy peut être écrit pour un fluide viscoélastique tel que la perte de la pression est calculé comme une fonction des propriétés du fluide [24;25].

En élongation, on peut distinguer plusieurs effets, comme l'effet d'entrée, les écoulements à trou (hole pressure) et les écoulements secondaires. L'effet d'entrée a lieu quand le fluide viscoélastique rentre dans un capillaire, aux alentours de l'entre l'écoulement n'est pas complètement développé et la conséquence est une surpression produite a niveau de la contraction [26]. Cet effet est à l'origine d'un problème bien connu en rhéologie et que peut donner des fausses contraintes de cisaillement dans un rhéomètre de cylindres coaxiaux [27].



**Figure 16 :** Représentation schématique d'un écoulement à trou. La surpression due à  $N_1$  est aussi affectée par les dimensions du trou. D'après [28].

Les écoulements à trou sont mis en évidence quand un fluide viscoélastique en écoulement dans un canal passe à côté d'un pore qui finisse dans une impasse (Figure 16).

Une pression additionnelle se développe à cause de la première différence de contrainte normale ( $N_1$ ). Une mesure de la chute de pression a niveau du trou peut être utilisée pour caractériser cette propriété [29]. Cet effet est aussi en relation avec les observations de Souza et al. [30] qu'ont montré aussi la capacité de pénétration d'un fluide viscoélastique dans une expansion abrupte en fonction de ces propriétés rhéologiques.

Les écoulements secondaires sont un effet bien connu qui est produit à l'entrée d'une contraction abrupte non cylindrique et se manifeste comme un vortex ou le fluide viscoélastique va recirculer par effet de la deuxième différence de contraintes normales ( $N_2$ ) [31]. Cette zone « morte » d'écoulement est caractérisée par le numéro de Deborah et dépend aussi du ratio de contraction [32].

En ce qui concerne la viscosité élongationnelle, des expériences avec des solutions de polyacrylamide ont montré une haute résistance hydraulique en écoulement extensionnel dans des milieux poreux à partir d'un certain gradient de vitesse critique [33], ce qui suggère de considérer également l'influence de la viscosité élongationnelle dans les procédés impliquant des solutions de polyacrylamide [34]

Tous ces effets ont lieu en conditions que nous allons reproduire partiellement dans notre étude. Cependant, il faut se rapprocher encore car nous serons en conditions d'un écoulement diphasique.

### **1.3.2 Effets de la viscoélasticité dans un écoulement diphasique.**

Nous avons déjà mentionné le phénomène de la digitation visqueuse qui a lieu quand deux fluides s'écoulent simultanément en milieu poreux. Diverses études fondamentales [35;36] nous montrent que la relation de viscosité entre les fluides et le numéro capillaire ( $Ca$ ) permettent établir trois situations : la digitation visqueuse, la digitation capillaire et l'écoulement stable.

Si le fluide déplacé est viscoélastique, les travaux de Wilson [37] et Lindner [38] nous montrent que la dimension caractéristique de l'instabilité de Saffman Taylor (l'épaisseur du doigt) est en relation directe avec des propriétés rhéologiques des fluides (comme  $N_1$  et le coefficient de la loi de puissance). Cependant, la situation d'écoulement stable en déplaçant avec un fluide viscoélastique (ce que nous nous disposons à étudier) est très peu documentée.

### 1.3.3 Etat de l'art

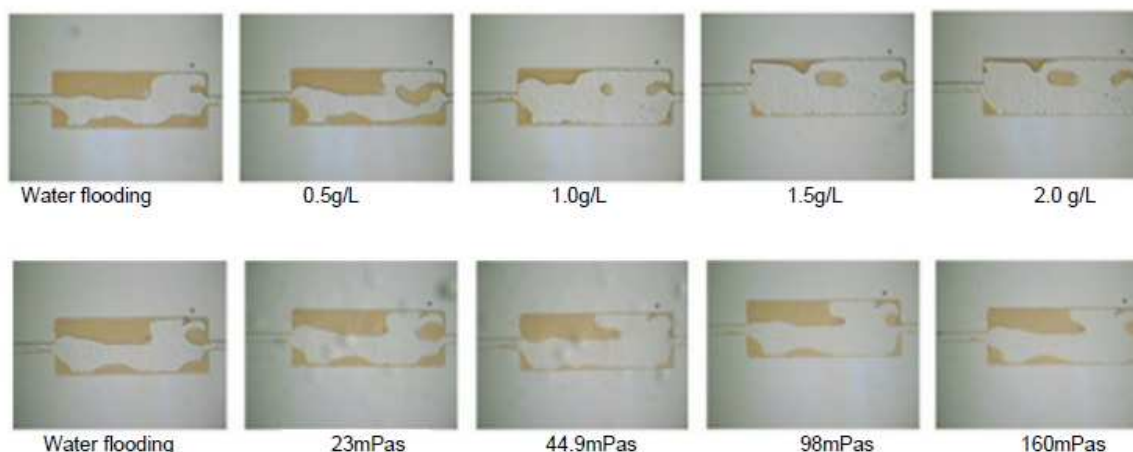
En 2000, Wang et al. [39] ont réalisé des expérimentations d'injections sur carottes de roches et indiquent que la récupération ultime d'huile était de 5 à 8 % supérieure avec injection de polymère qu'avec injection d'eau. Des résultats similaires obtenus sur champs sont mentionnés, où la récupération en injection polymère ou ASP est indiquée comme étant à chaque fois plus élevée qu'attendue à partir des courbes théoriques ne prenant en compte que les forces capillaires. Des expérimentations sur milieux poreux en verre ont mené aux mêmes résultats, et des explications ont été proposées mettant en exergue les propriétés viscoélastiques des solutions de polymère.

Avant ces études liées aux champs de Daqing, il n'était pas commun de trouver des relations entre l'efficacité de déplacement et les propriétés élastiques des fluides utilisés, même si on trouve dans la littérature quelques rares travaux où les effets de la viscosité non Newtonienne sur l'efficacité de déplacement sont étudiés [17;39-43].

Depuis 2000, parallèlement aux opérations de *polymer flooding*, un certain nombre de communications ont été produites par les équipes de recherche de Daqing, évoquant régulièrement une réussite du procédé liée aux aspects élastiques des solutions de polymères utilisées [14;22;23].

Après les observations mentionnées plus haut, des études systématiques ont été réalisées en 2004 sur les possibles effets du caractère élastique des solutions de polymère sur la diminution de la saturation résiduelle d'huile.

Xia et al. [44;45], ont utilisé un micromodèle en verre (Figure 17) où la mouillabilité est dite contrôlable. Bien qu'aucun détail ne soit donné sur la géométrie utilisée ou sur les moyens de contrôler la mouillabilité, l'auteur montre que la saturation diminue avec la viscoélasticité des solutions.



**Figure 17 :** Expériences sur noyaux d'huile. En haut, balayage avec de l'eau puis avec solutions de polyacrylamide (concentrations croissante). En bas, balayage avec de l'eau puis avec des solutions de viscosité croissante. D'après [45]

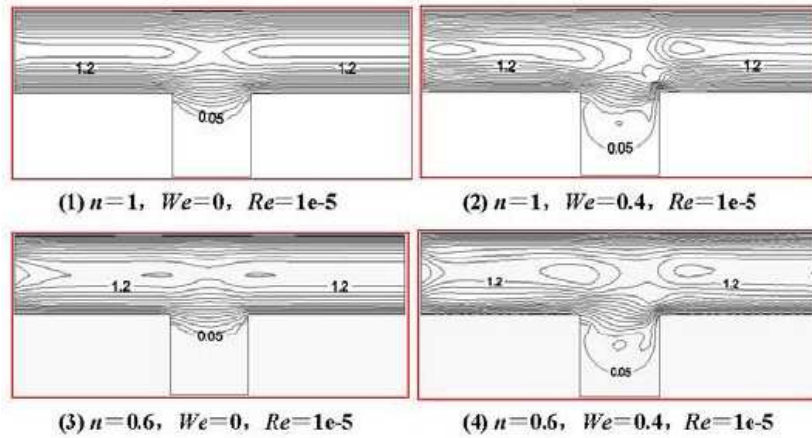
Tout en étant très peu documentées, ces études, parmi les premières à mettre en valeur les effets élastiques, révèlent dans leur conclusion principale que l'efficacité de déplacement augmente en fonction de l'élasticité de HPAM (polyacrylamide hydrolysé). Pour arriver à cette conclusion des expériences de déplacement sont réalisés en variant la concentration de HPAM (qui est accompagnée d'une augmentation de la viscosité et l'élasticité) et de la glycérine (fluide newtonien utilisé comme référence dont la viscosité seule augmente avec la concentration). Le résultat est une saturation résiduelle toujours plus faible : avec le HPAM, on observe un déplacement d'huile jusqu'à 50 % plus important que la glycérine au même nombre capillaire.

Dans la suite de notre travail, on montrera que la viscoélasticité des fluides peut être caractérisée en fonction de la première différence de contraintes normales  $N_1$ , du temps de relaxation ( $\lambda$ ), du module élastique ( $G'$ ) et du nombre de Weissenberg ( $Wi$ ). Dans le travail décrit ci-dessus, les procédures pour estimer  $N_1$  ne sont cependant pas détaillées, spécialement à faible gradient de vitesse, puisque le polymère est peu concentré. Des explications phénoménologiques peuvent être trouvées, évoquant des mécanismes plus ou moins précis ("bridging" entre le polymère et les films d'huile, ...).

En reprenant les observations de Xia, Hongjun et al. [46] ont réalisé des simulations numériques d'écoulements viscoélastiques pour étudier le phénomène. Le modèle rhéologique choisi est le MUCM (*Modified Upper-Convected Maxwell*) qui prend en compte la viscosité, l'élasticité et le caractère rhéofluidifiant des solutions polymériques. Étant donné



qu'il n'est pas possible de recréer toutes les formes dans lesquelles l'huile reste piégée (des gouttes, des films, *dead-end pores*, etc.), le modèle du *dead-end pore* est choisi (Figure 18) en concordance avec des recherches similaires où les configurations les plus utilisées sont les expansions et les contractions asymétriques abruptes. Le nombre de Weissenberg est utilisé pour caractériser l'élasticité du polymère et le nombre de Reynolds pour caractériser l'écoulement.

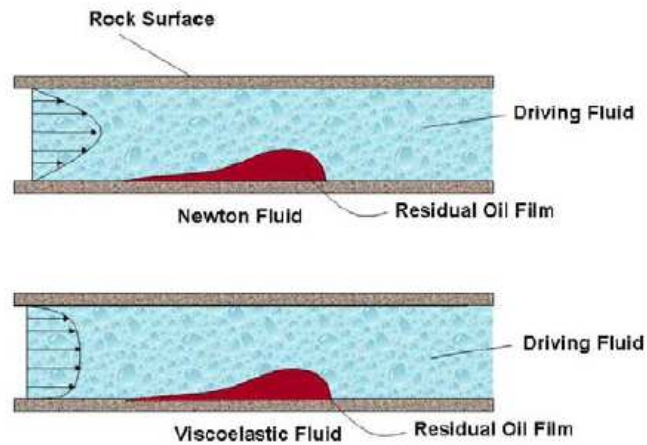


**Figure 18 :** Modélisation d'écoulement d'un fluide viscoélastique dans un *dead-end pore*. D'après [46]

Les résultats numériques montrent que la surface effective d'écoulement, délimité par les lignes de courant du fluide, dans les *dead-end pores* est significativement plus grande pour des polymères viscoélastiques. De ce fait, la surface où le fluide reste immobile est réduite. L'auteur suppose donc que l'efficacité de déplacement augmente pour cette raison ("capacité de pénétration du fluide dans le pore") quand  $Wi$  et le coefficient de la loi de puissance  $n$  augmentent (c'est-à-dire avec des fluides plus élastiques et moins rhéofluidifiants) [47]. L'apport le plus significatif de ce travail est le fait de considérer en même temps les deux caractéristiques non newtoniennes des solutions polymériques.

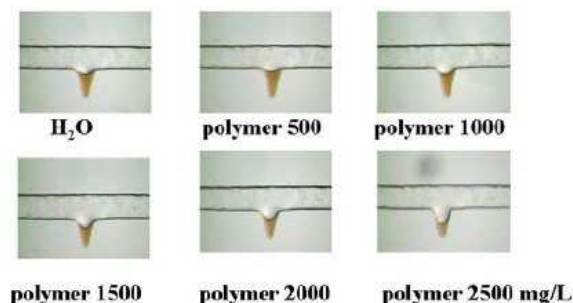
Chun and Pope de l'Université d'Austin ont présenté en 2008 [48] une analyse de la stabilité d'une colonne d'huile entourée d'un anneau de solution polymère viscoélastique dans une configuration cylindrique. Ils montrent ainsi que l'élasticité de la solution (représentée par un modèle de fluide de Maxwell) peut retarder la fragmentation de la colonne en gouttes d'huile, et ainsi par extrapolation réduire la saturation résiduelle. Des études plus récentes de Daqing [49;50] suggèrent des mécanismes variés pour expliquer plusieurs observations réalisées au niveau de la simulation, du laboratoire et même au niveau du gisement de Daqing. L'analyse est faite au niveau des forces à l'échelle du pore (appelées "microforces"),

générées entre le fluide déplaçant et l'huile déplacée. L'utilisation de simulations numériques utilisant des modèles rhéologiques viscoélastiques MUCM indique que pour un fluide viscoélastique (comme par exemple le HPAM qui est souvent utilisé dans les expériences), les profils de vitesse sont de type piston, alors que pour un fluide newtonien le profil de vitesse est parabolique (Figure 19).



**Figure 19 :** Représentation schématique des profils de vitesse pour un fluide newtonien et un fluide viscoélastique en train de balayer une goutte d'huile. D'après [49]

A partir de ces constatations, une analyse phénoménologique des forces à l'interface, montre que l'existence de forces élastiques permet de détacher plus d'huile qu'avec un fluide Newtonien avant d'arriver à un nouvel état de saturation résiduelle. Un certain nombre d'expérimentations en micromodèles sont proposées pour confirmer ces hypothèses. On peut voir par exemple (Figure 20) une expansion de la partie du fluide élastique qui est capable de modifier l'interface. Au fur et à mesure que la concentration du polymère augmente, ce fluide pénètre dans le pore et déplace plus d'huile en condition d'écoulement similaire.



**Figure 20** : Expériences dans des "dead-end pores" avec solutions de polymère viscoélastique. L'huile contenue dans le pore est déplacée à différentes concentrations de polymère. D'après [46]

D'autres observations qualitatives importantes sont par exemple les expériences qui montrent que l'efficacité de déplacement est meilleure pour le HPAM comparé au xanthane [50] (qui est rhéofluidifiant mais non élastique).

Huifen, en 2007 [50], utilise la première différence de contraintes normales  $N_1$  pour la première fois pour caractériser l'élasticité des solutions de HPAM. Il insiste sur le fait que la littérature offre peu de références et répète, d'une certaine manière, les expériences de *flooding* de Xia et al. de 2004 dans des carottes de silice partiellement mouillables à l'eau. De plus, il considère un gradient de vitesse réel pour vraiment établir les conditions de viscosité et d'élasticité en condition d'écoulement. Bien que les valeurs de  $N_1$  soient assez faibles, la grande contribution de ce travail est la préoccupation de relier les études d'efficacité de déplacement à une description cohérente de la rhéologie des fluides utilisés.

Haifeng et Huifen, en 2008 [51;52], continuent à développer l'hypothèse des "microforces". Haifeng ajoute des observations toujours qualitatives selon lesquelles, notamment, quand la saturation d'huile est haute, tant les fluides newtoniens que les fluides viscoélastiques poussent l'huile libre de manière équivalente par effet de la macropression ; cependant, quand la saturation est faible, les fluides viscoélastiques contribuent à mobiliser les ganglions d'huile – avec la formation de gouttes libres –, ce qui ne se produit pas avec les fluides newtoniens. Dans ce travail,  $Wi$  est supposé proportionnel à  $N_1$  et la variation de  $N_1$  est proposée pour caractériser le fluide viscoélastique.

Par ailleurs, des explications basées sur des raisonnements d'équilibre de "microforces" sont proposées dans ce même travail pour expliquer pourquoi un fluide viscoélastique n'est pas capable de déplacer de l'huile d'un pore mouillable à l'eau. Malheureusement, les forces invoquées (force de traînée, force centrifuge, force de

cohésion,..) ne sont pas explicitées et le lien avec la rhéologie des fluides et les conditions d'écoulement n'est pas expliqué.

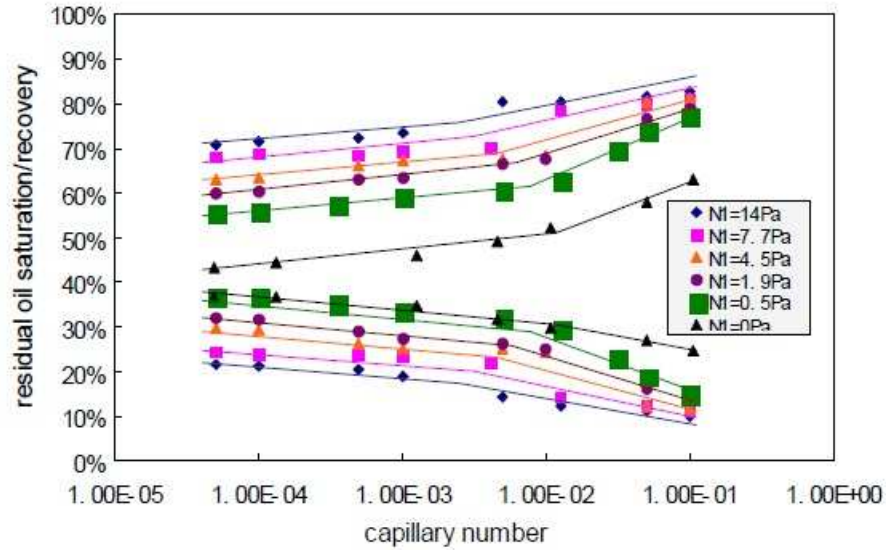
Enfin, les publications les plus récentes de cette équipe [53-56] mentionnent des résultats obtenus sur champs, où l'utilisation de solutions de polyacrylamide concentré (2500 ppm) pour le *polymer flooding* (donc fortement viscoélastiques) dans 30 puits a confirmé les observations. En effet, l'augmentation de la récupération par ce biais est passée de 13 % OOIP en 1996 à 20 % OOIP.

Parallèlement, Markus et al. [57] affirment aussi, en utilisant des micromodèles en silicone, que des solutions concentrées de polyacrylamide produisent un effet d'stabilisation du front d'avancement en déplaçant une huile moins visqueuse.

### 1.3.4 Formulation du problème

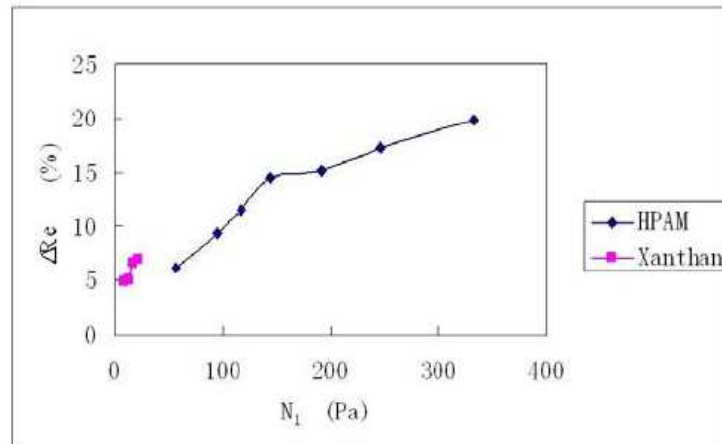
Bien que souvent peu documentés et détaillés, et présentant des analyses parfois un peu confuses, l'ensemble des travaux menés par les équipes de Daqing a le mérite d'avoir mis en évidence le fait que les formulations eau-polymère donnent des résultats convaincants pour leur capacité à modifier les conditions de piégeage de l'huile. En effet, une observation qui revient de façon régulière dans les paragraphes précédents est que la saturation d'huile diminue grâce à l'élasticité du fluide. Concernant l'élasticité d'un fluide, nous avons déjà remarqué qu'il est possible d'utiliser une variété de paramètres ( $N_1$ ,  $\lambda$ ,  $G'$ ,  $Wi$ ) pour caractériser différentes facettes d'un phénomène dont l'origine réside dans les forces de restauration des éléments constitutifs de ce fluide en écoulement. Néanmoins, le seul paramètre mesuré et éventuellement discuté concernant le caractère élastique du fluide dans les travaux cités est la première différence des contraintes normales  $N_1$ . Prenons deux exemples de ces observations spécifiques.

Dans la Figure 21, l'efficacité et la saturation résiduelle d'huile sont présentées en fonction du nombre capillaire de différentes formulations caractérisées par  $N_1$ . Il est admis que pour le même nombre capillaire, l'efficacité augmente et la saturation diminue au fur et à mesure que  $N_1$  augmente.



**Figure 21 :** Effet des contraintes normales dans la récupération en fonction du nombre capillaire. Relation saturation d'huile résiduelle / efficacité de déplacement en fonction du Ca. D'après [49]

Dans la Figure 22, deux formulations de polymères sont proposées pour illustrer les effets sur le pourcentage d'augmentation de l'efficacité ; l'effet du xanthane (polymère rhéofluidifiant ou essentiellement  $N_1=0$ ) est presque imperceptible ; cependant, des solutions de polyacrylamide, caractérisées par  $N_1$ , montrent une augmentation linéaire du pourcentage de récupération en fonction de  $N_1$ .



**Figure 22 :** Effet des contraintes normales dans la récupération en fonction du polymère utilisé. Pourcentage d'augmentation de l'efficacité de déplacement en fonction des valeurs des contraintes normales. D'après [49]

Il est en l'état difficile de décrire plus précisément les mécanismes physiques qui mènent à ces résultats. La bibliographie est peu abondante sur le sujet (presque exclusivement les équipes de Daqing) et les observations sont trop dispersées pour être capables de donner des réponses satisfaisantes sur l'effet de la viscoélasticité des fluides sur la récupération améliorée du pétrole. Un certain nombre de points manquants dans les études citées apparaissent nécessaires :

- Peu d'importance est accordée à la caractérisation des fluides, le terme « élasticité » en particulier manque de précision et une description précise des propriétés rhéologiques des fluides utilisés est nécessaire.
- Les géométries et les conditions d'écoulement utilisées sont très variées et souvent compliquées, ce qui ne permet pas une interprétation physique simple.
- Il n'y a pas de relation directe entre les différentes hypothèses présentées (microforces) et les caractéristiques du fluide utilisé (qui est essentiellement le HPAM), ce qui ne permet pas une généralisation à une série plus étendue de solutions polymériques.

À partir de ces remarques, notre intention dans ce travail est de tenter de comprendre comment les conditions de déplacement de l'huile peuvent être modifiées en fonction des caractéristiques bien identifiables de fluides viscoélastiques, avec les objectifs suivants :

1) Utiliser une variété de fluides convenablement caractérisés avec la possibilité d'ajuster la viscosité et l'élasticité dans la gamme des gradients de vitesse concernant toutes les opérations du *polymer flooding*.

2) Utiliser une géométrie modèle dans laquelle une expérience simple de déplacement immiscible puisse être mise en place. Ensuite, et en concordance avec les résultats, on cherchera à faire évoluer les géométries pour étendre les résultats à des conditions plus proches du cas réel. En respectant ces lignes directrices, nous tenterons de proposer des relations directes entre les caractéristiques du fluide et une efficacité de déplacement donnée par les géométries choisies.

La clarification d'un possible effet viscoélastique sur les performances des opérations de récupération assistée peut permettre d'ajouter un paramètre de formulation d'origine physique aux fluides utilisés, et donc peut potentiellement élargir les possibilités d'optimisation des procédés.

### 1.3.5 Démarche méthodologique

L'objectif principal de cette thèse est de contribuer à la compréhension des effets de la viscoélasticité des fluides sur la récupération améliorée du pétrole, et plus particulièrement sur les caractéristiques du déplacement d'un fluide par un autre dans un écoulement confiné. Pour cela, il faut mettre en évidence expérimentalement quels phénomènes physiques intervenant lors de la récupération sont sensibles aux propriétés viscoélastiques et les évaluer par rapport aux effets purement visqueux.

Dans le *polymer flooding*, le polyacrylamide est le polymère le plus utilisé. Son comportement rhéologique est bien connu et a été caractérisé. Une augmentation de sa concentration en solution aqueuse mène à un accroissement de la viscosité et des contraintes normales ; en même temps, ces dernières donnent leur caractère élastique aux solutions. De plus, une augmentation du gradient de vitesse dans ces solutions a pour effet d'augmenter les contraintes normales tout en diminuant la viscosité (rhéofluidification).

Dans une telle situation, il est difficile de séparer les effets liés à l'augmentation des forces visqueuses, des contraintes normales ou de la viscosité élongationnelle des fluides. Ainsi, afin de séparer les effets de ces variables, nous sommes amenés à chercher un système modèle dont les caractéristiques d'élasticité et de viscosité puissent être variés et quantifiés d'une façon systématique.

Un premier axe de travail a donc été constitué par la formulation des différents fluides viscoélastiques modèles nous donnant la latitude nécessaire, tels que : le polyacrylamide dans un solvant aqueux visqueux, l'oxyde de polyéthylène dans le polyéthylène glycol et le polyisobutylène de haute masse moléculaire dans le polyisobutylène de basse masse moléculaire. Ces systèmes ont été retenus car ils présentent une viscosité presque constante dans une gamme étendue de taux de cisaillement ; en même temps, ils présentent des caractéristiques élastiques qui se manifestent sous la forme d'une première différence de contrainte normale  $N_1$  suffisamment élevée aux forts gradients de vitesse.

Étant donné que l'objectif premier est d'étudier les phénomènes à l'échelle du pore et des interfaces, nous nous sommes efforcés de choisir au mieux des géométries simples qui permettent d'établir des relations entre la viscoélasticité d'un fluide (aqueux en principe) et son influence sur le déplacement d'un autre fluide de plus faible viscosité (de l'huile).

Une géométrie de type « Hele-Shaw » constitue le système simple que nous avons choisi pour nous permettre d'étudier le déplacement de l'huile par les fluides cités ci-dessus.

En effet, le modèle d'écoulement bidimensionnel est bien connu dans cette géométrie et nous aurons l'opportunité d'analyser ses différents effets à travers la déformation de l'interface au cours du déplacement. Différentes conditions d'écoulement et différents fluides sont nécessaires afin de disposer d'une gamme de variation des paramètres permettant de dégager des conclusions valides.

Les expériences d'écoulement proprement dites ont été centrées sur le développement, la stationnarité et la forme de l'interface entre le fluide aqueux (visqueux ou viscoélastique) et l'huile. Cette forme d'interface nous donne entre autres un critère de comparaison lié à la capacité d'une formulation pour mieux déplacer l'huile.

Nous nous sommes ensuite intéressés à des écoulements à travers des restrictions dans la cellule originale pour essayer de nous rapprocher davantage des conditions réelles d'écoulement.

Nous avons finalement complété ce travail avec des expériences effectuées en « microsystemes » (écoulements dans des canaux d'une centaine de micromètres de largeur). Une géométrie *dead-end pore* a notamment été choisie pour étudier la pénétration d'un fluide viscoélastique et d'un fluide newtonien dans le microsysteme initialement rempli d'huile.

L'ensemble de ce travail a comme ambition de poser des bases des mécanismes physiques pour contribuer à la compréhension globale de l'influence des caractéristiques rhéologiques (et en particulier viscoélastiques) du fluide sur l'efficacité de déplacement en récupération assistée.



# **Chapitre 2 : Rhéologie**

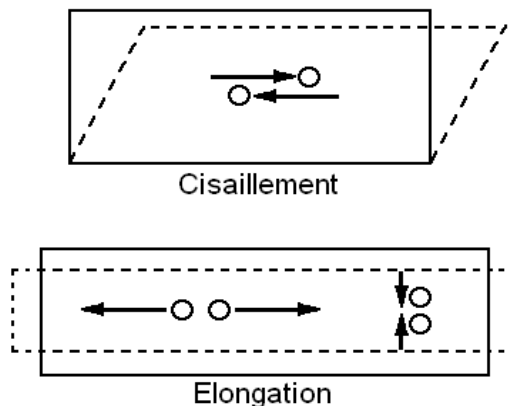
---



## 2.1 Rhéologie. Généralités

La rhéologie est la science qui étudie la déformation et l'écoulement de la matière. Un matériau est considéré comme déformé quand sa structure microscopique est modifiée du fait de l'action d'une force (plus spécifiquement une **contrainte**  $\tau$ ) appliquée sur lui. Si cette **déformation** est à l'origine d'un mouvement relatif « maintenu » entre les molécules adjacentes du matériau, nous parlons d'un **écoulement**.

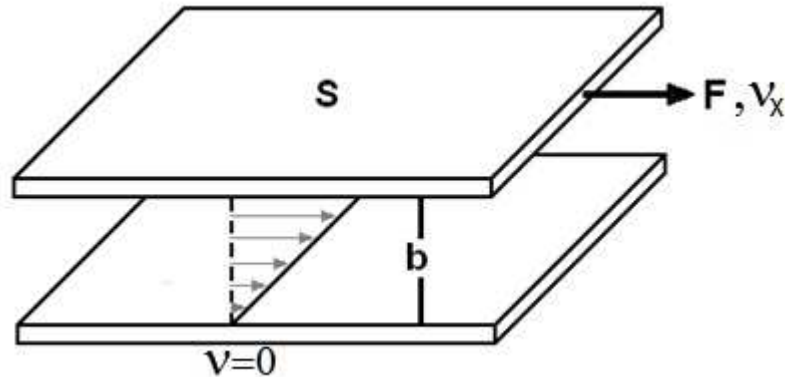
Les écoulements où nous trouvons des déplacements relatifs entre molécules adjacentes sont de deux sortes : de cisaillement et d'élongation. Dans un **écoulement de cisaillement**, deux éléments adjacents du matériau peuvent se croiser ; en revanche, dans un **écoulement d'élongation**, ces éléments, selon leur position dans l'écoulement s'éloignent à partir d'une position initiale proche ou se rapprochent à partir d'une position initiale distante. Ces déplacements relatifs dans les cas présentés dans la Figure 23 s'effectuent toujours dans des directions opposées.



**Figure 23** : Écoulement de cisaillement (deux particules adjacentes se croisent) et écoulement d'élongation (deux particules adjacentes s'éloignent ou se rapprochent)

Cependant, pour caractériser un écoulement entièrement, il faut utiliser une échelle de temps associée à la déformation ; on obtient finalement le **gradient de vitesse**  $\dot{\gamma}$  et le **taux d'élongation**  $\dot{\epsilon}$ .

D'abord considérons la situation représentée dans la Figure 24, un fluide confiné entre deux plaques de surface  $S$ , qui se trouvent à une distance  $b$  l'une de l'autre, est mis en mouvement par une force  $F$  appliquée à la plaque supérieure. La force nécessaire par unité de surface pour tirer la plaque est à l'origine de la contrainte ( $\tau = F / S$ ). Si la plaque inférieure est au repos et si la force  $F$  est telle que la plaque supérieure se déplace à une vitesse  $v_x$  constante, nous sommes dans le cas d'un écoulement de cisaillement « simple », avec un gradient de vitesse d'amplitude  $\dot{\gamma} = v_x / b$ .

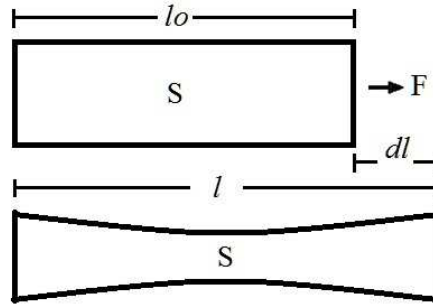


**Figure 24 :** Représentation schématique d'un écoulement de cisaillement simple induit par une force  $F$ . Le fluide confiné entre deux plaques de surface  $S$ , qui se trouvent à une distance  $b$ . La plaque supérieure se déplace à une vitesse  $v_x$

Dans le cas d'un fluide newtonien, le coefficient de proportionnalité reliant le gradient de vitesse à la contrainte est la **viscosité**  $\eta$  du fluide, qui est définie par :

$$\eta = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (2.1)$$

D'un autre côté, considérons l'échantillon représenté dans la Figure 25, de longueur initiale  $l_0$  soumis à une force  $F$ , dont le rapport avec la surface  $S$  représente la contrainte  $\tau$ , et qui produit un allongement  $dl$ . Ceci est un écoulement d'élongation et le rapport entre l'allongement et longueur initiale est définie comme la déformation relative  $\varepsilon = dl / l$ .



**Figure 25 :** Élongation infinitésimale d'un matériau soumis à une force  $F$ . Sa longueur  $l_0$  est augmentée d'un élément  $dl$

Pour un solide de Hooke, le coefficient de proportionnalité reliant la déformation relative à la contrainte est le **module élastique**  $G$ , défini par :

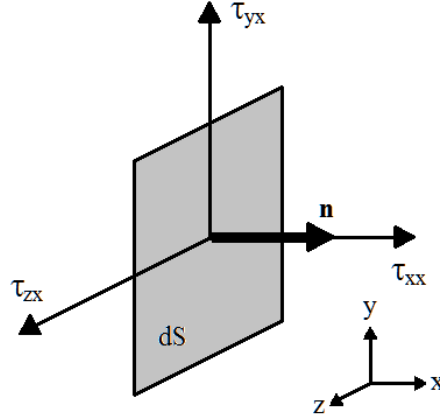
$$G = \frac{\tau}{\varepsilon} \quad (2.2)$$

Il serait pratique de pouvoir considérer que tout solide est purement « élastique » et tout liquide est purement « visqueux » mais aucun matériau « réel » ne correspond parfaitement à ces deux concepts. Avec les fluides viscoélastiques nous aurons même affaire à des matériaux intermédiaires entre un liquide et un solide. Pour décrire plus complètement les lois de comportement effectives des matériaux réels nous avons besoin d'outils supplémentaires.

### 2.1.1 Tenseur des contraintes

Le concept de pression  $P$  en tant que force normale exercée par unité de surface est bien connu, mais il y a également des contraintes qui conduisent à la déformation d'un fluide qui doivent être formulées complètement sous forme de tenseurs [58].

Considérons un élément de surface  $dS$  dont la normale  $\mathbf{n}$  est orientée selon  $O_x$ . Il faut d'abord définir les trois composantes de la contrainte suivant les axes  $x$ ,  $y$  et  $z$ . L'élément  $\tau_{ij}$  du tenseur représente la composante suivant  $i$  de la contrainte exercée sur une surface dont la normale est orientée suivant  $j$ . Ainsi  $\tau_{yx}$ ,  $\tau_{zx}$  et  $\tau_{xx}$  sont les composantes suivant  $O_y$ ,  $O_z$ , et  $O_x$  de la contrainte exercée sur une surface (Figure 26).  $\tau_{yx}$  et  $\tau_{zx}$  sont des **contraintes tangentielles** ou de cisaillement et  $\tau_{xx}$  est une **contrainte normale**.



**Figure 26 :** Composantes  $\tau_{yx}$ ,  $\tau_{zx}$  et  $\tau_{xx}$  de la contrainte exercée sur une surface dont la normale est orientée selon Ox

Le tenseur des contraintes  $\Gamma$  se décompose en une partie qui correspond aux contraintes de pression (associées au tenseur identité  $\mathbf{I}$ ) qui ne conduit en général pas à la déformation du fluide et  $\boldsymbol{\tau}$  est le tenseur des contraintes visqueuses ou déviateur des contraintes car il produit une déformation dans le fluide :

$$\Gamma = -P\mathbf{I} + \boldsymbol{\tau} \quad (2.3)$$

La relation entre le tenseur des contraintes et l'histoire des déformations est à l'origine des lois de comportement pour décrire l'écoulement d'un fluide. Pour décrire correctement les déformations et leur histoire il faut définir le tenseur des gradients de vitesse  $\mathbf{L}$  au sein du fluide :

$$\mathbf{L} = \frac{dv_i}{dx_j} \quad (2.4)$$

Ce tenseur peut être décomposé en une partie symétrique et une partie antisymétrique. Les termes de la diagonale caractérisent des efforts en traction ou en compression, alors que les autres représentent les efforts associés au cisaillement. C'est-à-dire que le tenseur des taux de déformation  $\mathbf{D}$  qui nous intéresse correspond à la partie symétrique de  $\mathbf{L}$  :

$$\mathbf{D}_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{dv_i}{dx_j} + \frac{dv_j}{dx_i} \right) \quad (2.5)$$

Dans le cas d'un cisaillement simple, le tenseur des contraintes visqueuses et le tenseur des taux de déformation s'écrivent :

$$\boldsymbol{\tau} = \begin{pmatrix} \tau_{xx} & \tau_{xy} & 0 \\ \tau_{xy} & \tau_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \tau_{zz} \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

$$\mathbf{D} = \frac{\dot{\gamma}}{2} \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.7)$$

La viscosité apparente est définie comme :

$$\eta = \frac{\tau_{xy}}{\dot{\gamma}} \quad (2.8)$$

Et la première et deuxième différences de contraintes normales sont définies comme :

$$N_1 = \tau_{xx} - \tau_{yy} \quad (2.9)$$

$$N_2 = \tau_{yy} - \tau_{zz} \quad (2.10)$$

Nous reviendrons sur la signification physique des contraintes normales dès que nous aborderons les fluides viscoélastiques.

L'équation constitutive pour les fluides newtoniens incompressibles contient une seule constante : la viscosité  $\eta$ , nous pouvons écrire  $\boldsymbol{\tau} = 2\eta\mathbf{D}$  qui donne  $N_1=N_2=0$  en cisaillement simple.

### 2.1.2 Le comportement newtonien

Supposons une expérience conduite à pression et à température constante ; si nous prenons en considération les concepts abordés dans les paragraphes précédents, il est possible de caractériser le comportement newtonien d'une façon nette :

- La seule contrainte générée au sein du fluide est la contrainte tangentielle, et les deux différences de contraintes normales sont nulles.
- La viscosité est constante pour n'importe quel gradient de vitesse imposé.

- La viscosité est constante sur n'importe quel temps de cisaillement et la contrainte tangentielle devient nulle immédiatement après l'arrêt du cisaillement.
- Toute viscosité mesurée selon des déformations différentes est en relation directe avec la viscosité  $\eta$  ; par exemple, la viscosité élongationnelle planaire  $\eta_{EP}$  mesurée sur une déformation d'élongation est telle que  $\eta_{EP} = 4\eta$  (nous reviendrons sur le concept de la viscosité élongationnelle par la suite).

Tout liquide qui présente une déviation de ces caractéristiques est considéré comme un **fluide non-newtonien**. Par ailleurs, certains liquides qui rentrent dans cette catégorie montrent aussi des caractéristiques élastiques (donc liées à un caractère solide). Ils sont connus en tant que fluides **viscoélastiques**. Par la suite, nous allons nous intéresser à ces fluides qui sont le centre d'intérêt de notre travail.

## 2.2 Fluides Viscoélastiques :

La viscoélasticité est donc la combinaison des caractéristiques visqueuses et élastiques dans un même matériau. Maxwell (1867) est l'un des premiers à proposer un modèle mathématique pour un liquide avec des propriétés élastiques.

Un solide est une matière qui, soumise à une contrainte donnée, a une déformation fixe finale et ne change pas continuellement de forme sous l'effet de cette contrainte. Un liquide est une matière qui change continuellement de forme (il s'écoule) quand il est soumis à une contrainte donnée, indépendamment de l'amplitude de la contrainte [59].

Pour comprendre de façon simple comment un matériau peut présenter ces deux caractéristiques, imaginons un liquide de structure complexe qui présente une énergie minimale au repos. Si une contrainte lui est appliquée, le « liquide » s'écoule en adoptant un comportement visqueux ; mais, dès que la contrainte est relâchée, ses forces internes réagissent pour récupérer l'état initial et revenir à la microstructure d'énergie minimale. Ce comportement présente une analogie avec celui d'un solide élastique qui reprend sa forme initiale quand on ne lui applique plus de contrainte. On parle alors d'un comportement viscoélastique [47].



Nous avons aussi évoqué l'importance du temps d'application d'une contrainte : à notre « échelle de temps » habituelle notamment, nous considérons l'eau comme un liquide, mais une surface d'eau peut se comporter comme un solide quand un corps tombe dessus à grande vitesse. Cela implique en effet un effort très important durant une très courte période, inférieure au temps dont les molécules d'eau ont besoin pour retrouver un équilibre après une perturbation (connu comme le **temps de relaxation**  $\lambda$  du matériau). Dans de telles conditions, la surface d'eau se comporte comme une surface solide. Dans un sens rigoureux, presque tous les fluides réels sont des fluides viscoélastiques. Pour pouvoir observer ce comportement atypique, il faut donc changer « d'échelle de temps ».

En effet, dans des temps d'observation courts, ou à fréquences élevées, un matériau viscoélastique soumis à une contrainte a un comportement solide comme le cas de l'eau cité ci-dessus. En revanche, si le temps d'observation est long, ou si la fréquence d'oscillation est faible, celui-ci a un comportement liquide. Cette échelle de temps est caractérisée par le nombre de Deborah,  $De$ , nombre adimensionnel qui compare le temps de relaxation caractéristique du matériau au temps caractéristique d'observation  $T$ .

$$De = \frac{\lambda}{T} \quad (2.11)$$

Il existe également un nombre adimensionnel relatif au temps de relaxation du fluide (formellement similaire au  $De$ , bien qu'il diffère par sa signification physique) que l'on utilise pour caractériser en général l'élasticité d'un fluide en écoulement : le nombre de Weissenberg ( $Wi$ ).

$$Wi = \lambda \dot{\gamma} \quad (2.12)$$

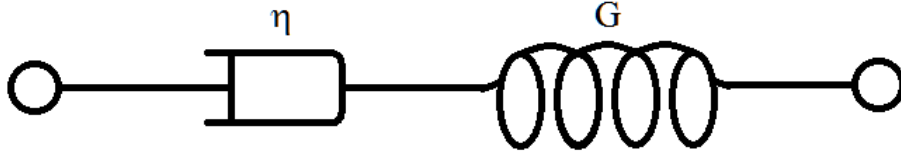
Ce nombre permet d'estimer l'état d'anisotropie généré par une déformation. Des valeurs élevées de  $Wi$  sont une indication que le fluide n'a pas de temps suffisant pour se « réorganiser » (contraintes normales non nulles), suggérant que les effets élastiques sont non négligeables.

### 2.2.1 Viscoélasticité linéaire :

D'un point de vue mécanique, la viscoélasticité est classiquement modélisée par deux éléments distinctifs : un ressort pour prendre en compte les caractéristiques élastiques et un

amortisseur hydraulique pour les caractéristiques visqueuses. Avec des combinaisons de ces éléments, nous pouvons définir plusieurs modèles dont le modèle de Maxwell et le modèle de Kelvin-Voigt sont les modèles de base.

Par exemple avec le modèle de Maxwell, un amortisseur et un ressort sont mis en série (Figure 27) :



**Figure 27** : Modèles de Maxwell de viscoélasticité linéaire. La viscosité et le module élastique  $G$  sont représentés par un amortisseur et un ressort respectivement.

Pour le ressort élastique, la contrainte  $\tau$  est proportionnelle à la déformation relative  $\varepsilon$  par l'intermédiaire d'une constante de proportionnalité qui est le module élastique  $G$  (2.2). Dans l'amortisseur hydraulique, qui est supposé immergé dans un fluide newtonien de viscosité  $\eta$ , la contrainte  $\tau$  est proportionnelle au gradient de vitesse  $\dot{\gamma}$  (2.1). La déformation totale  $\gamma$  est la somme des déformations, ce qui donne la relation suivante :

$$\gamma = \varepsilon + \gamma_v \quad (2.13)$$

que l'on peut écrire :

$$\tau + \frac{\eta}{G} \dot{\tau} = \eta \dot{\gamma} \quad (2.14)$$

Si l'on applique une déformation  $\gamma_0$  à partir de l'instant initial ( $t > 0$ ) et que l'on résout l'équation précédente, on obtient :

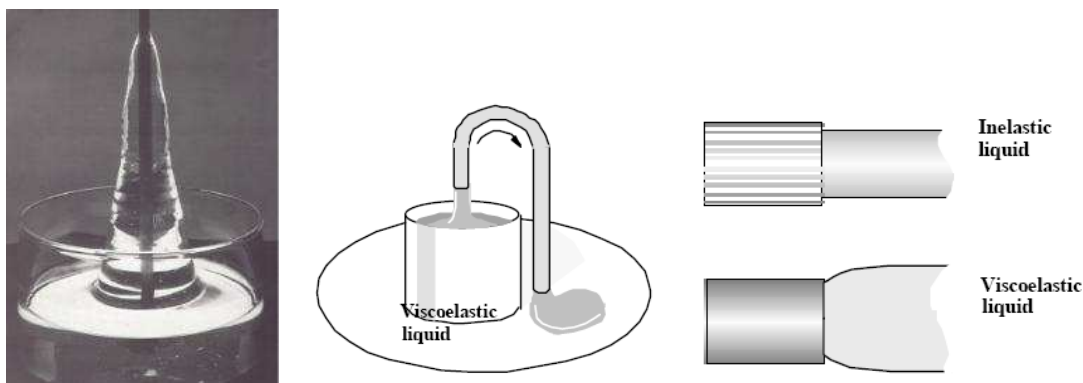
$$\tau = \eta \dot{\gamma}_0 e^{-tG/\eta} \quad (2.15)$$

Le rapport  $\eta/G$ , est le temps de relaxation  $\lambda$  du matériau.

## 2.2.2 Viscoélasticité non linéaire (Forces normales) :

Certains effets liés à la viscoélasticité d'un fluide ne sont pas explicables avec les modèles de viscoélasticité linéaire. Idéalement, les forces de restauration doivent être égales dans les trois directions de l'espace ; un matériau viscoélastique linéaire devrait donc récupérer ses caractéristiques initiales d'une façon équivalente.

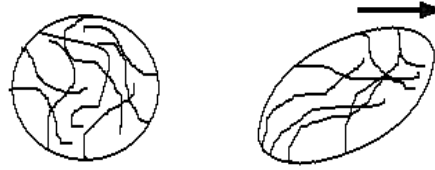
Plusieurs effets très particuliers des fluides viscoélastiques (Figure 28) sont liés à des différences de contraintes normales non nulles, comme l'effet Weissenberg pour lequel un fluide soumis à agitation, au lieu de générer un vortex concave autour de la tige d'agitation, donne lieu à un vortex convexe qui commence à « monter » sur la tige dès que le gradient de vitesse est suffisant pour entraîner le développement de contraintes normales appréciables. Le phénomène de « siphon spontané », quant à lui, montre qu'un fluide mis en contact avec un siphon est capable de se vider depuis le récipient où il était confiné, par effet des contraintes normales propres et sans exercer aucune succion de l'autre côté du siphon. Au final, un phénomène présent dans le processus d'extrusion montre comment un fluide viscoélastique se « gonfle » sous l'effet des contraintes normales pour occuper, à la sortie d'un tube, un volume plus grand que celui qu'il occupait à l'intérieur.



**Figure 28** : Effets de la viscoélasticité non linéaire. A gauche l'effet Weissenberg, au centre le siphon sans tube et à droite le gonflement en sortie de filière. D'après [59]

Ces phénomènes trouvent leur origine à l'échelle microscopique quand les contraintes normales dans les trois directions de l'espace ne sont pas les mêmes. D'un point de vue physique, la génération de contraintes normales inégales et les valeurs non nulles de  $N_1$  et de  $N_2$  proviennent du fait que, dans un écoulement, la microstructure d'un liquide viscoélastique devient anisotrope.

Prenons par exemple la Figure 29, où des molécules du polymère sont diluées dans l'eau. Des chaînes de polymère, qui, au repos, auraient une enveloppe sphérique, auront tendance à se déformer dès qu'un cisaillement est imposé pour devenir un ellipsoïde dont l'axe majeur sera dans la direction de l'écoulement.



**Figure 29 :** A gauche, sphère de fluide au repos soumise à une contrainte, devenant un ellipsoïde (à droite)

Les forces de restauration de cette microstructure anisotrope sont aussi dotées d'un caractère anisotrope et s'avèrent plus importantes dans la direction principale par rapport aux deux autres directions orthogonales. Ces forces « restauratrices » sont donc à l'origine des différences de contraintes normales  $N_1$  et  $N_2$  mais la deuxième est toujours très faible.

### 2.2.3 Viscosité élongationnelle

Quand un matériau est soumis à un écoulement d'élongation, qui peut être uniaxial, biaxial et planaire [47], la résistance du fluide à se déformer est définie comme la viscosité élongationnelle  $\eta_E$ .

Considérons la théorie de Hencky qui définit une déformation incrémentée ( $d\varepsilon$ ) comme le rapport entre un changement de longueur ( $dl$ ) par rapport à la longueur initiale ( $l$ ), [60] :

$$d\varepsilon = \frac{dl}{l} \quad (2.16)$$

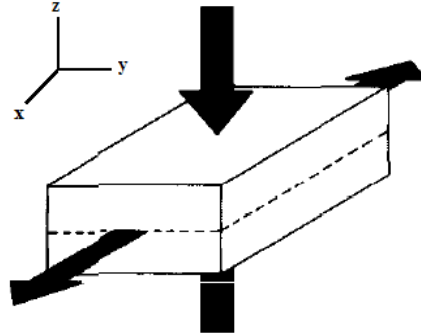
La déformation relative peut être écrite comme :

$$\varepsilon = \int \frac{dl}{l} = \ln\left(\frac{l}{l_0}\right) = \ln\left(1 + \frac{dl}{l_0}\right) \quad (2.17)$$

On définit alors le taux de déformation :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\partial l}{\partial t} \cdot \frac{1}{l} = \frac{dv}{l} \quad (2.18)$$

Considérons le cas particulier d'une élongation planaire bidimensionnelle équivalant à l'étirement d'une feuille plate et mince de matériau dans une seule direction ( $x$ ), avec une contraction correspondante dans son épaisseur suivant la direction  $z$ , mais sans aucune variation dans la largeur  $y$  de la feuille (Figure 30).



**Figure 30** : Schéma d'une Élongation planaire dans la direction  $x$

Le champ de vitesse s'écrit :

$$v_x = \dot{\varepsilon}x \quad (2.19)$$

$$v_y = 0 \quad (2.20)$$

$$v_z = -\dot{\varepsilon}z \quad (2.21)$$

avec le tenseur de taux de déformation associé :

$$\mathbf{D} = \dot{\varepsilon} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

Pour un fluide newtonien le tenseur des contraintes sera donc :

$$\mathbf{\Gamma} = -P\vec{\delta} + \boldsymbol{\tau} = \begin{pmatrix} -P + 2\eta\dot{\varepsilon} & 0 & 0 \\ 0 & -P & 0 \\ 0 & 0 & -P - 2\eta\dot{\varepsilon} \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

La première différence de contraintes normales dans ce cas est donc  $\tau_{xx} - \tau_{zz}$ , et décrit la résistance du fluide à cette élongation :

$$\tau_{xx} - \tau_{zz} = (-P + 2\eta\dot{\epsilon}) - (-P - 2\eta\dot{\epsilon}) = 4\eta\dot{\epsilon} = \eta_{EP}\dot{\epsilon} \quad (2.24)$$

Dans le cas particulier d'une élongation planaire,  $\eta_{EP}$  est la viscosité élongationnelle planaire et on trouve pour un fluide newtonien,  $\eta_{EP} = 4\eta$  où  $\eta$  est la viscosité de cisaillement. En généralisant pour un fluide non newtonien, on définit la viscosité élongationnelle planaire comme :

$$\eta_{EP}(\dot{\epsilon}) = \frac{\tau_{xx} - \tau_{zz}}{\dot{\epsilon}} \quad (2.25)$$

Pour apprécier l'effet d'un écoulement d'élongation dans le cas d'un fluide non newtonien on calcule le nombre de Trouton [61] :

$$Tr = \frac{\eta_E(\dot{\epsilon})}{\eta(\dot{\gamma})} \quad (2.26)$$

Dans le cas particulier d'une élongation planaire, le nombre de Trouton peut être écrit ainsi [62] :

$$Tr = \frac{\eta_E(\dot{\epsilon})}{\eta(2\dot{\epsilon})} \quad (2.27)$$

Toute déviation de  $Tr = 4$  (valeur en newtonien) est ainsi associée au caractère non newtonien d'un fluide.

# **Chapitre 3 :**

# **Matériels et méthodes**

---





### 3.1 Formulation et caractérisation des fluides de travail :

La première tâche de la partie expérimentale a consisté à trouver des fluides de travail avec des caractéristiques particulières dans la gamme de gradients de vitesse comprise entre  $0,1 \text{ s}^{-1}$  et  $1000 \text{ s}^{-1}$ . En effet, les gradients de vitesse au niveau de l'opération de *polymer flooding* sont classiquement considérés comme compris entre  $0,1 \text{ s}^{-1}$  et  $100 \text{ s}^{-1}$ , bien que pouvant atteindre les  $1000 \text{ s}^{-1}$  au niveau de l'injection. Les caractéristiques recherchées pour nos fluides de travail sont les suivantes :

- Viscosité constante et comparable à celle des formulations réelles de *polymer flooding*.
- Existence d'effets élastiques, tels qu'une première différence de contraintes normales  $N_1$  non négligeable, un module élastique élevé ou un temps de relaxation élevé.
- Contrôle aisé de la viscosité et de l'élasticité au travers de la formulation.
- Reproductibilité des propriétés rhéologiques.

Des fluides modèles présentant ces caractéristiques offriront la possibilité d'étudier expérimentalement l'effet de la viscoélasticité sur des écoulements sans changer significativement la viscosité du système. Parmi d'autres caractéristiques – non indispensables mais certainement appréciables –, nous pouvons citer les suivantes :

- Stabilité des paramètres rhéologiques dans le temps.
- Formulations organiques ou aqueuses.
- Bonne résistance chimique et thermique.

### 3.1.1 Formulation

Les fluides de Boger [63-66] sont des fluides viscoélastiques qui a priori présentent les qualités primaires nécessaires, c'est-à-dire une zone de gradients de vitesse où la viscosité est quasi-constante (comme pour un fluide newtonien) et simultanément – dans la même gamme de gradients de vitesse – des effets élastiques, révélés par l'apparition de valeurs significatives de la première différence de contraintes normales.

Polymère	% wt	Solvant Visqueux	% wt	Solvant Secondaire	%wt
Polyacrylamide Hydrolysé	0,02	Sirop de maïs	90 - 95	Eau	5 - 10
	0,10	Glycérol			
	0,08	Maltose			
Separan AP30	0,10–0,015	Glycérol	82 - 90	Eau	10 - 18
Separan MG500	0,04 - 1				
Gomme Xanthane	0,02	Sirop de blé	85 - 93	Eau	7 - 15
Polyisobutylène	0,05 – 0,42	Polyisobutylène	95,59 - 95,95	Kérosène	4,0
Polyisobutylène	0,05 – 0,1	Polybutène	97,00 – 98,2	Kérosène	1,8 - 3
Polyisobutylène	0,25	Polybutène	95	Tetradecane	4,75
Polyisobutylène	0,10	Exxon Parapol 450	40	Exxon Parapol 700	60
Polystyrène	0,15	Hercules Piccolastic	80	Diocetylphthalate	20
Polyisobutylène	0,10	Exxon Vistanex	38	Tetradecane	62
Polystyrène	0,09 – 0,24	Oligomeric Polybutène	99,76-99,91	N/A	N/A
Polystyrène	0,16	Oligomeric Polystyrène	1	Diocetylphthalate	52 -63
	0,23		70	Trichloropropane	30
Polyoxyde d'éthylène	1,5 - 2,5	Eau	97,5-98,5	Hydroxytoluène butylé	0,02 – 0,05
Polyoxyde d'éthylène	0,10 – 0,15	Eau	50	Polyéthylène-glycol	50

**Tableau 1 :** Concentrations typiques pour la formulation de divers Fluides de Boger. D'après [63-65;67-76]

Un fluide de Boger est généralement composé d'un polymère de haute masse moléculaire dissout dans un solvant peu visqueux. Un troisième composant est de plus incorporé, composant dont le rôle est d'augmenter la viscosité du système. Le résultat est donc un fluide viscoélastique aqueux ou organique (selon la nature du solvant) apparemment

**newtonien**, car sa viscosité est stabilisée grâce à l'effet du composant viscosifiant, et aussi **élastique** du fait des longues chaînes de polymère de haute masse moléculaire qui sont à l'origine des différences de contraintes normales non nulles.

Pour mieux comprendre ces fluides, prenons en considération certains systèmes présentés dans le Tableau 1. Une première série de systèmes comprend entre 150 et 1000 ppm de HPAM et de Separan (polyacrylamide non ionique) qui, une fois dissous dans l'eau, sont viscosifiés avec du glycérol, du maltose ou du sirop de blé et de maïs : [63;65].

Les solutions aqueuses de ces deux polyacrylamides ont un fort caractère rhéofluidifiant avec des viscosités toujours plus élevées pour les solutions hydrolysées que pour les non ioniques. Au niveau « élastique », toutes les solutions de polyacrylamide développent une première différence de contrainte normale non nulle. Dès que le composant viscosifiant est ajouté (un polyol dans le cas du glycérol et des sucres dans les autres cas), la viscosité a tendance à se stabiliser sans que le caractère élastique, dérivé de la réorganisation chaînes de polymère lorsqu'un gradient de vitesse est appliqué, soit affectée. L'appellation « fluide de Boger » provient en fait de la combinaison « Separan, eau, sirop de maïs » [64;69;70] qui a attiré l'attention par cette particularité « newtonienne-élastique ».

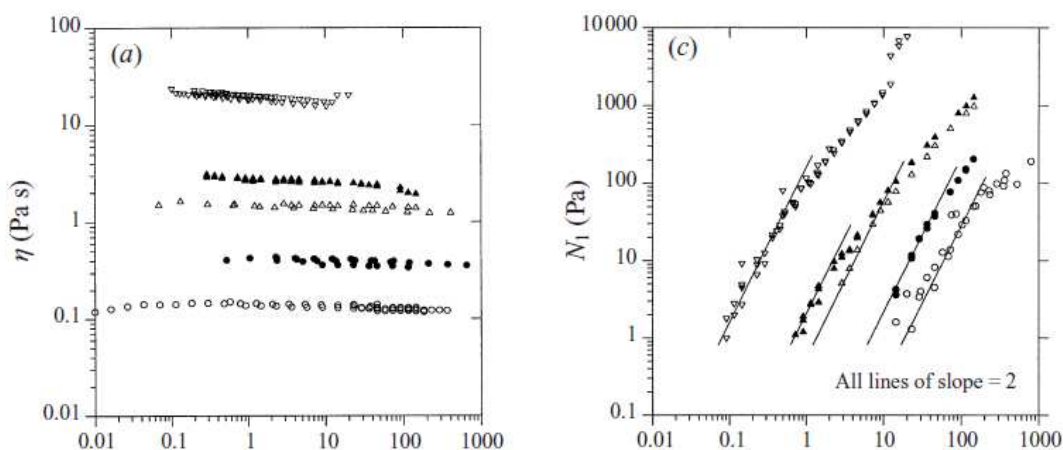
Une deuxième série de systèmes est composée de polyisobutène et de polystyrène de haute et de moyenne masse moléculaire dissouts dans un solvant organique comme le kérosène ou le tétradécane avec des composants viscosifiants très variés parmi lesquels nous pouvons trouver le polymère mais avec une masse moléculaire faible [67;68;72-75].

Une dernière série de systèmes, moins présente dans la littérature que la précédente, est composée du polyoxyde d'éthylène dissout dans de l'eau ; en matière de composant viscosifiant, apparaît le polyéthylène glycol [76] ; selon la composition et la masse moléculaire de polyoxyde d'éthylène, nous trouvons aussi des systèmes « sans viscosifiant » [71].

Chacun de ces trois systèmes génériques présente des intérêts potentiels ; cependant, aucun des systèmes cités ne réunit l'ensemble des caractéristiques spécifiques désirées pour notre travail. Deux critères préliminaires ont été établis pour accepter ou écarter les formulations avant de passer à une caractérisation rigoureuse.

Ces caractéristiques désirées sont : une viscosité proche de 0,1 Pa.s, et stable dans la gamme de gradients de vitesse mentionnée auparavant et l'apparition d'une différence de contrainte normale  $N_1$  appréciable – au moins 50 Pa – au plus vers les 100 s<sup>-1</sup>. Ces critères sont justifiés en fonction de la viscosité à gradient de cisaillement nul des formulations pour

le « *polymer flooding* » [11;14;16;17;41;49;77]. D'un autre côté, nous avons établi un niveau de contrainte normale arbitraire en fonction de la détection des contraintes normales par notre appareil et en essayant d'assurer un niveau d'élasticité minimal dans une gamme de gradient de vitesse raisonnables – nous ne voulons pas de formulations où le caractère élastique est mis en évidence vers un gradient de vitesse très élevé.

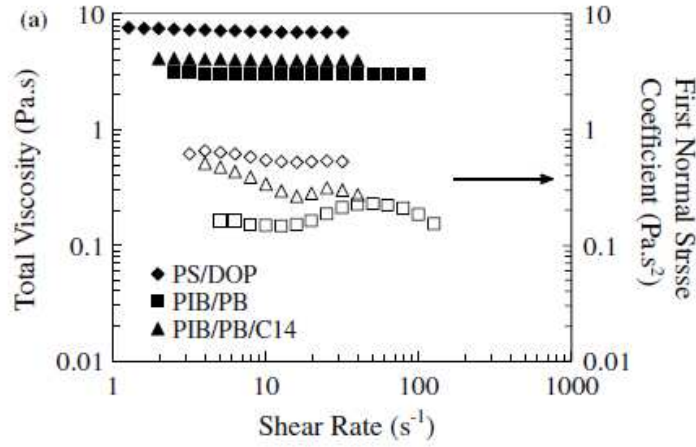


**Figure 31 :** Viscosité et première différence de contrainte normale pour différents fluides de Boger (○ 82 % Glycérol 150 ppm PAM, ● 90 % Glycérol 150 ppm PAM, △ 85 % Sirop de maïs 150 ppm PAM, ▲ 88 % Sirop de maïs 250 ppm PAM ▽ 93 % Sirop de maïs 400 ppm PAM). D'après [70]

Les systèmes avec polyacrylamide (PAM) – qui sont préférables, car il s'agit du polymère le plus utilisé en *polymer flooding* – sont soit très visqueux si le viscosifiant est un sirop, soit très peu élastiques si le viscosifiant est le glycérol – car la solubilité du PAM dans le glycérol est faible. Par exemple, dans la Figure 31, le fluide PAM-glycérol montre une viscosité autour 0,1 Pa.s et  $N_1$  dépasse à peine les 100 Pa à  $1000 \text{ s}^{-1}$ . Les fluides PAM-sirop développent au contraire des contraintes normales appréciables, au moins 1000 Pa autour de  $1000 \text{ s}^{-1}$ , mais leur viscosité est toujours au-dessus de 1 Pa.s. L'utilisation d'un sucre moins visqueux comme viscosifiant semble appropriée s'il est possible d'obtenir le niveau de viscosité correct.

Les systèmes organiques permettent aisément d'obtenir un niveau élastique désiré, néanmoins ils restent très visqueux. Certains systèmes constitués d'un même polymère (comme le polyisobutylène ou le polystyrène) pour une partie à haute masse moléculaire et pour l'autre partie à faible masse moléculaire dans du tétradécane comme solvant primaire semblent idéaux pour notre propos. Par exemple, nous voyons dans la Figure 32 divers systèmes dont les viscosités sont toujours au-delà de 3 Pa.s. Leur coefficient de première

différence de contrainte normale ( $\Psi_1 \equiv N_1 / \dot{\gamma}^2$ ) permet de déduire des contraintes normales au-delà de 1000 Pa bien avant les  $1000 \text{ s}^{-1}$ .



**Figure 32** : Viscosité et coefficient de première différence de contrainte normale pour différents fluides de Boger (▲ PIB-Tetradecane ♦ Polystyrène-Dioctylphthalate ■ PIB-PIB) D'après [73]

Le système polyoxyde d'éthylène dans de l'eau avec polyéthylène-glycol (PEG/PEO) comme viscosifiant semble être un très bon fluide modèle pour sa viscosité et son élasticité mais il s'agit d'un polymère facilement dégradable qui n'est pas stable dans le temps. La faible différence entre  $\eta_s$  (viscosité à cisaillement infini) et  $\eta_0$  (viscosité à cisaillement nul) suggère que l'on a affaire à un fluide presque newtonien mais les temps de relaxation élevés indiquent un caractère élastique non négligeable. Dans le Tableau 2, nous pouvons observer les caractéristiques des certains de ces fluides.

PEG concentration (wt.%)	PEO concentration (wt.%)	PEO $M_w$ (g/mol)	$\eta_s$ (Pa.s)	$\eta_0$ (Pa.s)	$[\eta]$ (m <sup>3</sup> /kg)	$\lambda$ (s)	Wi/Ca
50	0.0	—	10.03	10.03	0.0	0.0	0.0
	0.075	$9 \times 10^5$	10.03	11.58	0.19	0.32	2.42
	0.075	$5 \times 10^6$	10.03	12.51	0.30	6.47	42.62
	0.075	$8 \times 10^6$	10.03	13.69	0.44	14.5	92.65

**Tableau 2** : Caractéristiques des fluides de Boger PEG-PEO. D'après [76]

La préparation a été faite en suivant la procédure de Boger [63]. Le polymère est dissout dans une quantité adéquate de solvant primaire et mélangé pendant un premier temps d'agitation ( $t_{m1}$ ). À cette solution, on ajoute ultérieurement le viscosifiant, et le mélange est réalisé pendant un deuxième temps d'agitation ( $t_{m2}$ ).

Cette procédure est généralisée pour la préparation de toutes les formulations suivantes (sauf conditions spécifiques précisées) avec des temps d'agitation adaptés à chaque système. Les différentes formulations considérées sont présentées ci-dessous.

### 3.1.1.a Fluides de Polyacrylamide

Le premier choix pour commencer la formulation des fluides de Polyacrylamide (PAM) a consisté dans la nature du polyacrylamide à utiliser : hydrolysé ou non ionique. Bien que le produit préféré pour le *polymer flooding* soit le polyacrylamide hydrolysé (FLOPAM®), nous avons opté pour le polyacrylamide non ionique, par raison de simplicité. Nous justifierons ce choix plus loin. Le polyacrylamide utilisé a une masse moléculaire de  $10^6$  g/mol (PAM non ionique Aldrich).

La concentration finale de PAM dans la formulation choisie pour les premières expériences a été établie à  $[PAM]_f = 500$  ppm dans la formulation finale, (ce qui est en accord avec les concentrations utilisées dans les études citées), à partir d'une solution concentrée de 30 000 ppm. Nous avons situé la limite de concentration de PAM dans cette dernière pour des raisons pratiques, car pour préparer des solutions au delà de cette concentration, des temps de mélange très longs sont nécessaires.

#### ***Fluide PAM-Maltose***

Pour définir le système, nous cherchions une solution sucrée similaire à celle des diverses études précédentes [63;70], mais avec une viscosité plus basse. La première piste à suivre a été d'étudier la composition des sirops de blé, de maïs et de maltose utilisés dans les études citées. Tous ces sirops sont composés principalement de maltose, entre 40 et 70 % masse/masse [63], avec du fructose et certaines quantités de gluten (principalement les sirops de blé) mais les résultats sont des fluides de très haute viscosité. Pour éviter la dégradation rapide des formulations préparées avec des sucres, nous ajoutons un bactéricide qui est l'azoture de sodium ( $NaN_3$ ) [70]

Nous avons donc choisi le maltose (Aldrich) en fonction de la viscosité de ses solutions concentrées (0,01 Pa.s à 47 % de maltose en eau) avec comme objectif que la viscosité du fluide résultant s'ajuste autour de 0,1 Pa.s par l'addition du PAM. Cependant, en travaillant à la limite de la solubilité du maltose dans l'eau (48 % à 25°C), dès que la solution de viscosifiant est ajoutée à la solution concentrée du polymère, la formulation se trouble, du fait d'une solution non homogène et ne peut pas être utilisée.

La concentration finale du maltose dans la formulation a été diminuée progressivement. À 40 % de maltose, la formulation est encore hétérogène et à 30 % de maltose, la solution résultante n'est pas assez visqueuse même avec une augmentation de la concentration de PAM. Un résumé des caractéristiques obtenues figure dans le Tableau 3 :

Formulation	$\eta$ à $1s^{-1}$ (Pa.s)	$\eta$ à $100s^{-1}$ (Pa.s)	$N_1$ à $100 s^{-1}$ (Pa)	Observations
PAM-500-Maltose47	*	*	*	Turbide
PAM-500-Maltose40	*	*	*	Turbide
PAM-500-Maltose30	0,01 Pa.s	0,009 Pa.s	0	Peu élastique
PAM-1000-Maltose30	0,012	0,01 Pa.s	0	Peu élastique

\* Non mesuré

**Tableau 3 :** Caractéristiques des formulations PAM-Maltose

### ***Fluide PAM-Canadou***

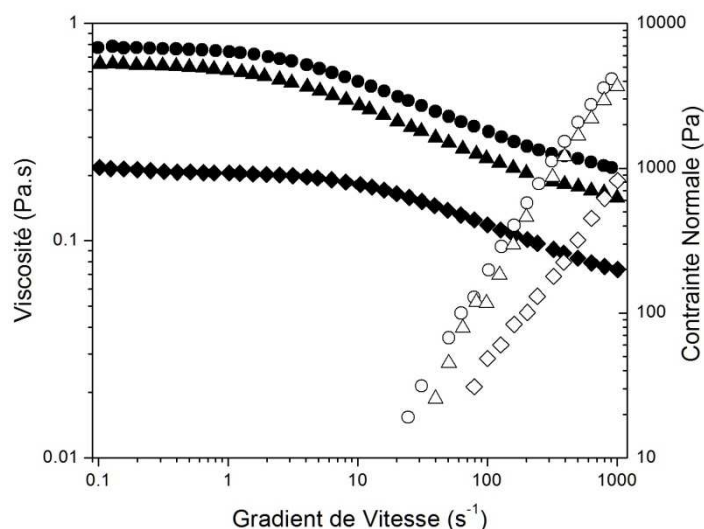
La faible viscosité et les problèmes de solubilité du maltose pur nous ont conduits vers d'autres sirops sucrés. Le produit commercial Canadou® (CAN), composé principalement de saccharose, est un fluide newtonien qui atteint une viscosité de 0,16 Pa.s et qui nous a donné une option intéressante pour poursuivre la formulation des autres systèmes. Nous gardons l'utilisation d'azoture de sodium pour éviter la dégradation.

Des formulations ont ainsi été préparées avec différentes proportions de CAN dans l'eau. Des solutions avec une concentration supérieure à 80 % massique de CAN ont été finalement écartées, car 80 % est la concentration la plus élevée de CAN avec laquelle le fluide présente une viscosité presque constante entre  $1s^{-1}$  et  $1000s^{-1}$  avec 500 ppm de PAM. Un résumé des caractéristiques rhéologiques des formulations préliminaires PAM-CAN est rapporté dans le Tableau 4.

Formulation	$\eta$ à $1s^{-1}$ (Pa.s)	$\eta$ à $100s^{-1}$ (Pa.s)	$N_1$ à $100 s^{-1}$ (Pa)	Observations
PAM500-CAN95	0,25	0,2	0	Peu élastique, rhéofluidifiante
PAM500-CAN90	0,21	0,18	0	Peu élastique, rhéofluidifiante
PAM500-CAN80	0,1	0,08	0	Peu élastique
PAM500-CAN60	0,07	0,06	0	Peu élastique
PAM500-CAN50	0,05	0,04	0	Peu élastique

**Tableau 4 :** Caractéristiques des formulations préliminaires PAM-CAN

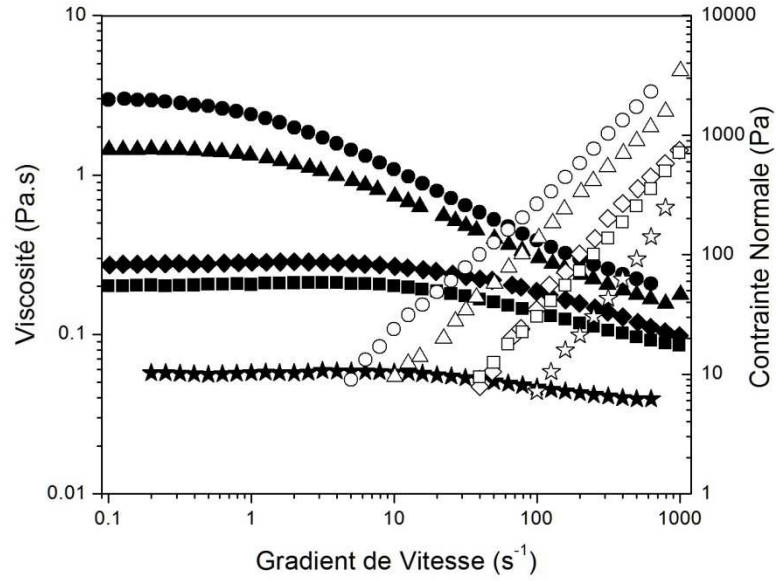
Les données de la table précédente révèlent l'absence de contraintes normales, et nous avons donc augmenté la concentration en PAM. Les résultats de la Figure 33 nous montrent qu'obtenir un fluide de viscosité faible, constante et avec une valeur de  $N_1$  significative est une tâche très compliquée – comme remarqué en [78] –, car les solutions présentent un plateau newtonien à gradient de vitesse faible, puis, à plus fort gradient de vitesse, le comportement rhéofluidifiant caractéristique du PAM apparait, cette rhéofluidification étant accompagnée par l'apparition des forces normales liées également à la présence de PAM dans la formulation [63]. Cependant avec 80% de Canadou dans l'eau nous trouvons un compromis acceptable pour les trois variables, c'est-à-dire,  $N_1$  à  $100 \text{ s}^{-1} = 30 \text{ Pa}$ ,  $\eta$  à  $1 \text{ s}^{-1} = 0,21 \text{ Pa.s}$  et  $\eta$  à  $100 \text{ s}^{-1} = 0,14 \text{ Pa.s}$ .



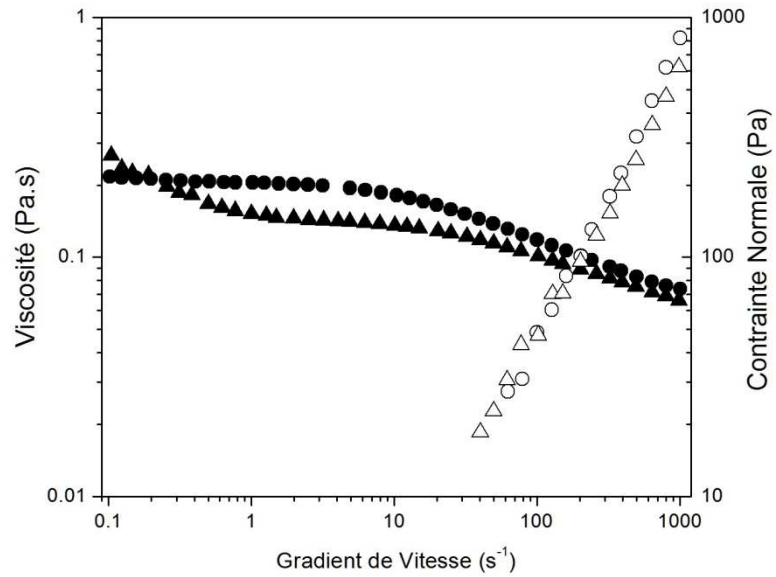
**Figure 33** : Formulations PAM-Canadou avec 4000 ppm de PAM. Pour les différentes concentrations de Canadou,  $\eta$  [80 % (◆), 90 % (▲), et 95 % (●)] et  $N_1$  [80 % (◇), 90 % (△), et 95 % (○)] en fonction du gradient de vitesse.

Différentes concentrations de polyacrylamide ont été testées dans une solution aqueuse à 80% de Canadou®, afin d'obtenir des contraintes normales encore plus élevées. Tous ces résultats sont résumés dans la Figure 34 et nous suggèrent que les conditions désirées se situent aux alentours d'une concentration de 5000 ppm de PAM. Un fluide avec ces caractéristiques assure ainsi une viscosité maximale de 0,3 Pa.s et minimale de 0,1 Pa.s et (respectivement entre  $0,1 \text{ s}^{-1}$  et  $1000 \text{ s}^{-1}$ ) avec  $N_1$  appréciable, qui commence à être mesurable dès  $40 \text{ s}^{-1}$ .





**Figure 34 :** Viscosité et première différence de contrainte normale pour diverses concentrations de PAM dans des solutions aqueuses à 80% de Canadou.  $\eta$  [à 10000 ppm (●), 8000 ppm (▲), 5000 ppm (◆), 4000 ppm (■) et 2000 ppm (★)] et  $N_1$  [à 10000 ppm (○), 8000 ppm (△), 5000 ppm (◇), 4000 ppm (□) et 2000 ppm (☆)] en fonction du gradient de vitesse.

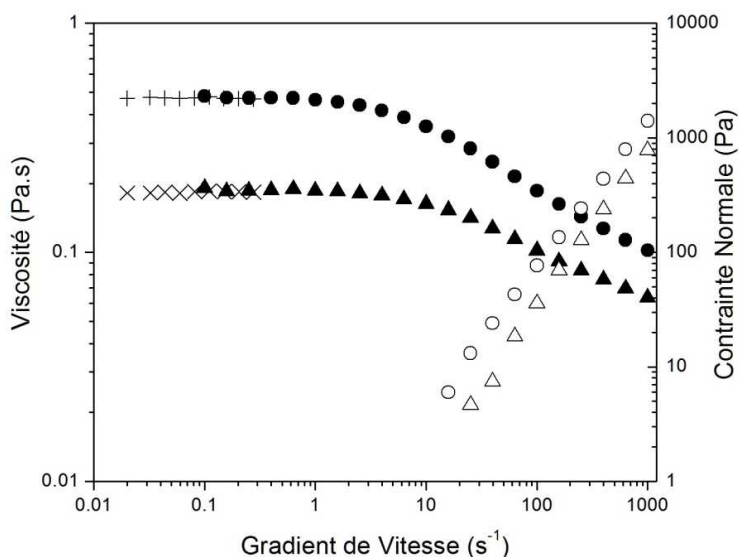


**Figure 35 :** Propriétés rhéologiques de deux échantillons 80 % de CAN, 4000 ppm de PAM :  $\eta$  [Echantillon 1 (●) et Echantillon 2 (▲)] et  $N_1$  [Echantillon 1 (○) et Echantillon 2 (△)] en fonction du gradient de vitesse.

Des tests effectués en préparant plusieurs échantillons séparément montrent que la reproductibilité n'est pas parfaite (Figure 35). Ceci est probablement lié aux interactions électrostatiques entre les groupes carboxyles des chaînes de PAM, le degré d'ionisation n'étant pas parfaitement contrôlé. Pour diminuer les effets de ces interactions électrostatiques, il est courant, dans ce type de formulation, d'employer un électrolyte qui stabilise le degré d'ionisation du système et permet de diminuer et d'homogénéiser la taille des molécules de PMA en solution [79]. Nous avons choisi le Chlorure de Sodium NaCl pour poursuivre la formulation, qui a effectivement amélioré la reproductibilité :

### ***Fluide PAM -Canadou-NaCl***

Avec l'incorporation du Chlorure de Sodium NaCl, le résultat est l'atténuation de la rhéofluidification et une meilleure reproductibilité des propriétés rhéologiques ; cependant, un effet supplémentaire est la légère diminution des contraintes normales. Nous avons gardé deux formulations (désormais dénommées respectivement PAM-6000 et PAM-4000) après nous être assurés que la viscosité est constante même en dessous de  $0,1 \text{ s}^{-1}$  au travers d'expériences avec un rhéomètre *low shear* (Figure 36).



**Figure 36 :** Caractérisations des formulations PAM-6000 et PAM-4000. Viscosité (●), Viscosité à faible gradient de vitesse (+) et  $N_1$  (○) pour PAM-6000 (20 % Eau, 80 % Canadou, 6000 ppm PAM et 2000 ppm NaCl) et Viscosité (▲), Viscosité à faible gradient de vitesse (×) et  $N_1$  (△) pour PAM-4000 (20 % Eau, 80 % Canadou, 4000 ppm PAM et 2000 ppm NaCl) en fonction du gradient de vitesse.

Nous poursuivons avec la démarche de formulation des autres systèmes, mais nous reviendrons sur la caractérisation détaillée de ces deux formulations dans la deuxième partie de ce chapitre.

### 3.1.1.b Formulations organiques (PIB-PIB)

Nous avons choisi un système « simple » pour aborder la formulation organique avec le polyisobutylène utilisé comme précurseur des contraintes normales (haute masse moléculaire) et le même polymère (faible ou moyenne masse moléculaire) utilisé comme viscosifiant. Nous avons choisi le tétradécane comme solvant primaire. Nous rappelons que l'intérêt de cette formulation est d'étudier un système inverse (huile de haute viscosité qui pousse une phase aqueuse de viscosité plus faible) même si les viscosités sont plus élevées que le niveau souhaité.

Les différentes formulations à partir de combinaisons de trois masses moléculaires différentes pour le polymère de haute masse moléculaire – PIB 1-2 million g/mol, PIB 2-4 million g/mol et PIB 4-8 million g/mol – (avec des concentrations différentes), d'un viscosifiant de masse moléculaire faible (PIB 920 g/mol), d'un viscosifiant de masse moléculaire moyenne (PIB 3000 g/mol) et de différentes concentrations de tétradécane sont résumées dans le Tableau 5 :

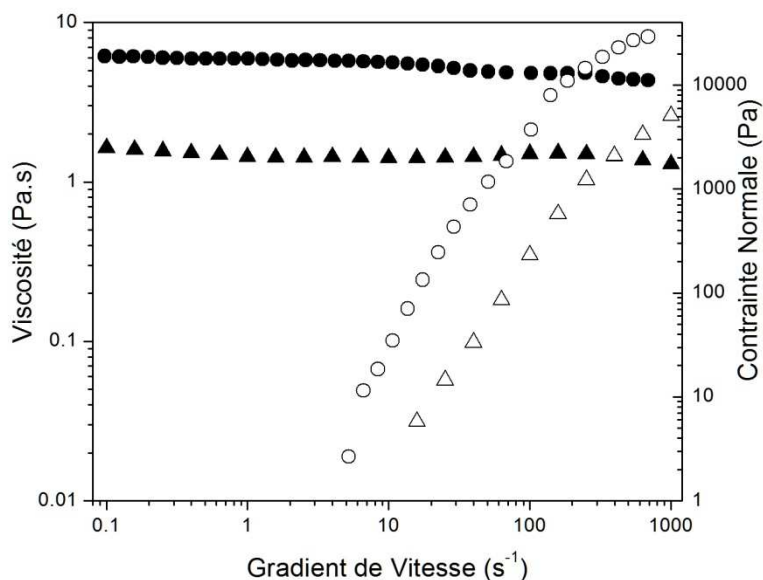
Polymère (PIB)		Viscosifiant	% n-C14	$\eta$ à 100s <sup>-1</sup> (Pa.s)	N <sub>1</sub> à 100 s <sup>-1</sup> (Pa)	Observations
MW (g/mol)	[ ] ppm					
1-2.10 <sup>6</sup>	750	PIB 3000	5	> 10	*	très visqueux
1-2.10 <sup>6</sup>	750	PIB 3000	15	> 10	*	très visqueux
1-2.10 <sup>6</sup>	1000	PIB 3000	5	7	4000	très visqueux
2-4.10 <sup>6</sup>	1000	PIB 3000	5	> 5	*	très visqueux
4-8.10 <sup>6</sup>	1000	PIB 3000	5	> 5	*	très visqueux
1-2.10 <sup>6</sup>	1000	PIB 920	15	1.4	200	RAS
2-4.10 <sup>6</sup>	1000	PIB 920	15	> 2	*	très visqueux
4-8.10 <sup>6</sup>	1000	PIB 920	15	> 2	*	très visqueux

\* Non mesuré

**Tableau 5** : Caractéristiques des formulations préliminaires PIB-PIB

Nous avons donc choisi le système organique composé de PIB 1-2 million g/mol et le polyisobutylène de basse masse moléculaire (920 g/mol) comme viscosifiant, avec la

possibilité de faire varier les propriétés en fonction de la concentration de solvant primaire. Les propriétés de ces deux formulations, désormais dénommées respectivement PIB-I et PIB-II sont résumées dans la Figure 37.



**Figure 37 :** Courbes d'écoulement de deux formulations PIB-PIB. Viscosité (●) et  $N_1$  (○) pour la formulation PIB-I (1000 ppm PIB  $M_w=1-2.10^6$  g/mol, 5% tétradécane, 95% Polybutène) ainsi que Viscosité (▲) et  $N_1$  (△) de la Formulation PIB-II (1000 ppm PIB  $M_w=1-2.10^6$  g/mol, 15% tétradécane, 85% Polybutène) en fonction du gradient de vitesse.

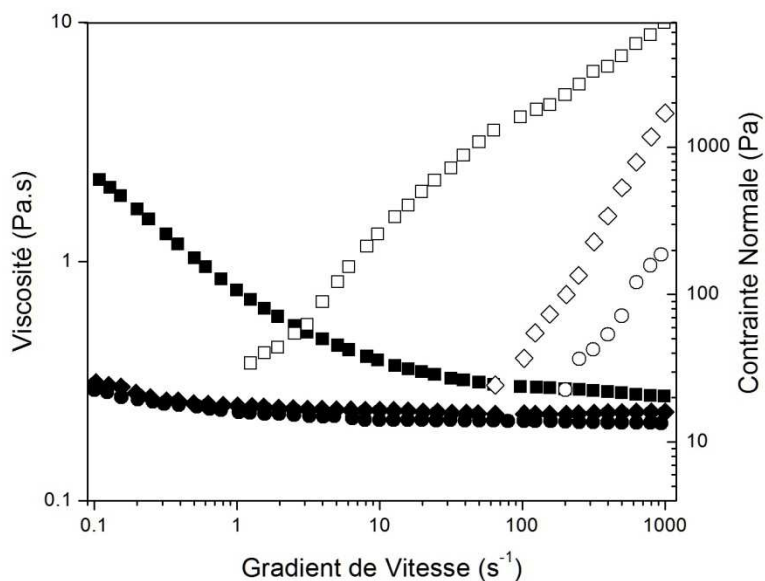
### 3.1.1.c Fluide aqueux PEO-PEG

La combinaison polyéthylène glycol/oxyde de polyéthylène présentée dans diverses études [71;76] comme un fluide de Boger avec contraintes normales élevées a été testée. Nous avons choisi comme variables de formulation la masse moléculaire de l'oxyde de polyéthylène – PEO 1,4 et 8 million g/mol ainsi que la concentration finale de polyéthylène glycol. Un résumé des expériences est présenté dans le Tableau 6 :

Polymère (PEO)		% PEG	$\eta$ à $1000\text{s}^{-1}$	$N_1$ à $100\text{s}^{-1}$	Observations
MW (g/mol)	[ ] ppm				
$1.10^6$	750	50	0.21 Pa.s	0	$\eta$ constante entre $1\text{s}^{-1}$ et $1000\text{s}^{-1}$
$4.10^6$	750	50	0.26 Pa.s	40	$\eta$ constante entre $1\text{s}^{-1}$ et $1000\text{s}^{-1}$
$8.10^6$	750	50	0.26 Pa.s	800	$\eta$ constante entre $1\text{s}^{-1}$ et $1000\text{s}^{-1}$
$8.10^6$	1500	40	0.16 Pa.s	1590	Très élastique
$1.10^6$	2000	50	0.26 Pa.s	50	$\eta$ constante entre $1\text{s}^{-1}$ et $1000\text{s}^{-1}$
$4.10^6$	2000	50	0.26 Pa.s	250	$\eta$ constante entre $1\text{s}^{-1}$ et $1000\text{s}^{-1}$

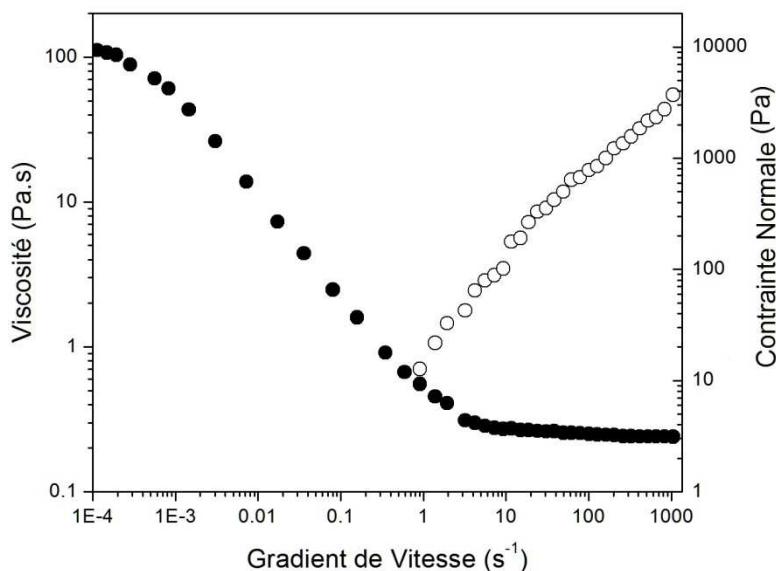
**Tableau 6 :** Caractéristiques des formulations préliminaires PEG-PEO

La viscosité ne semble pas un inconvénient pour cette formulation car elle est fortement influencée par la viscosité de la solution PEG 50%. En effet, comme nous pouvons le constater dans la Figure 38, le seul paramètre fortement modifié par la masse moléculaire du PEO utilisé est la première différence de contrainte normale.



**Figure 38 :** Formulations aqueuses 50 % PEG avec 800 ppm de PEO de trois masses moléculaires différentes. Viscosité (●) et  $N_1$  (○) de PEO MW =  $8 \times 10^6$  g/mol ; Viscosité (▲) et  $N_1$  (△) de PEO MW =  $4 \times 10^6$  g/mol ; Viscosité (◆) et  $N_1$  (◇) de PEO MW =  $10^6$  g/mol en fonction du gradient de vitesse.

Une caractérisation plus précise de la formulation préparée avec PEO de masse moléculaire  $8 \cdot 10^6$  g/mol, montre un inconvénient : elle présente deux plateaux de viscosité constante (voir en Figure 39). En effet, l'écoulement présentera en conséquence une viscosité localement comprise entre celle du premier plateau (gradient de vitesse nul au milieu de la cellule) et celle du deuxième plateau (gradient de vitesse maximum à la paroi). En revanche, les formulations avec PAM présentent la viscosité désirée dans le premier plateau de viscosité constante.

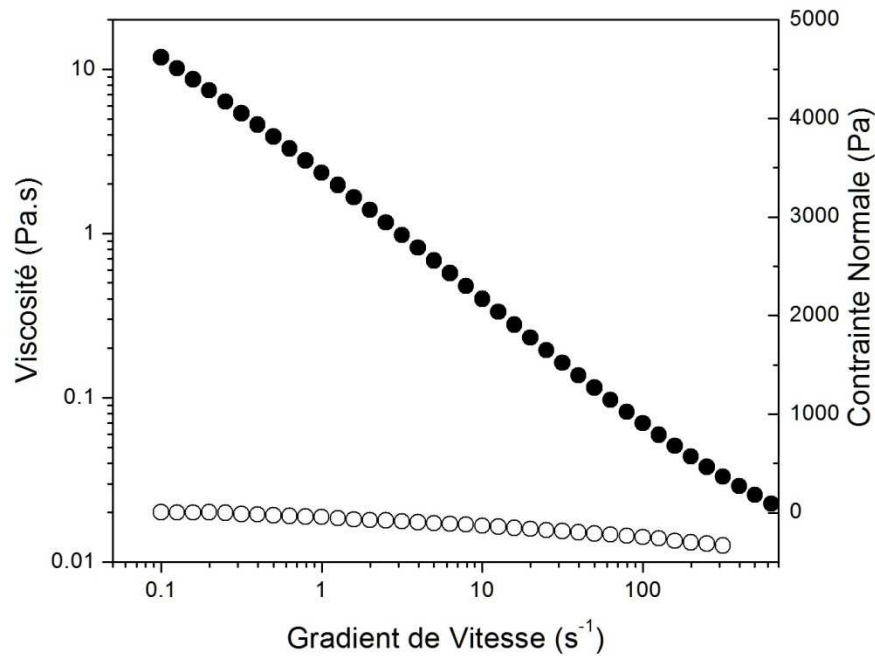


**Figure 39 :** Courbe d'écoulement de la formulation 50 % PEG et 800 ppm PEO de  $MW=8 \cdot 10^6$  g/mol.  $\eta$  (●) et  $N_1$  (○) en fonction de gradient de vitesse.

Remarquons que plusieurs auteurs ont mené des expériences mettant en œuvre des fluides de Boger sans faire cas du comportement des formulations en dessous de  $10 \text{ s}^{-1}$  [76]. Nous allons revenir sur les détails de caractérisation ultérieurement en soulignant que le système PEG-PEO présente cependant des avantages multiples du fait de la variété de  $N_1$  accessibles en variant la masse moléculaire et concentration du PEO sans changer radicalement la viscosité du système.

### 3.1.1.d Fluide xanthane

En complément, pour étudier les effets d'un fluide rhéofluidifiant non élastique dans nos écoulement en cellule de Hele-Shaw, nous avons formulé un système avec du xanthane. Les caractéristiques rhéologiques de ce fluide sont présentées sur la Figure 40 :



**Figure 40 :** Courbe d'écoulement de la formulation XAN-5000 constituée de 5000 ppm de Xanthane dans l'eau.  $\eta$  ( $\bullet$ ) et  $N_1$  ( $\circ$ ) en fonction de gradient de vitesse. À noter le caractère rhéofluidifiant et des contraintes normales négligeables.

On peut représenter sa viscosité par une loi de puissance :

$$\eta = 2,235\dot{\gamma}^{-0,732} \quad (3.1)$$

Les contraintes normales mesurées sont supposées liées aux effets inertiels constatés dans la géométrie de mesure (Voir section 3.1.2.a).

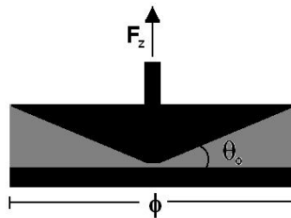
### 3.1.2 Caractérisation rhéologique :

Nous avons d'ores et déjà utilisé la rhéométrie pour caractériser la courbe d'écoulement et la première différence de contraintes normales

Ici nous décrivons les géométries et les méthodes – ainsi que les bases nécessaires pour réaliser les mesures et analyser les résultats – utilisées pour la caractérisation de paramètres tels que : la viscosité  $\eta$ , la première différence de contrainte normale  $N_1$ , le module élastique  $G'$ , le module de perte  $G''$ , le temps de relaxation  $\lambda$  et la viscosité élongationnelle  $\eta_E$ .

#### 3.1.2.a Rhéomètre AR-2000 – Géométrie de mesure

Pour mesurer la viscosité et la première différence de contraintes normales, nous avons utilisé un rhéomètre AR-2000 (TA Instruments) à contrainte imposée. Nous avons utilisé une géométrie cône-plan qui est constituée d'un disque et d'un cône tronqué de même diamètre  $\phi$  avec un angle  $\theta_o$ , dont le sommet fictif est situé sur le disque. Le cône et le disque sont coaxiaux. Par la suite, nous considérons le cas où le cône tourne et où le disque est fixe. Le fluide à analyser remplit l'espace entre les deux parties du système de mesure (Figure 41).



**Figure 41 :** Géométrie Cône-Plan. Cette géométrie de diamètre  $\phi$  et avec un angle  $\theta_o$  mesure la force normale  $F_z$  exercée dans la direction de l'axe du cône par le fluide.

La vitesse locale d'un point du cône situé à une distance  $r$  de l'axe vaut  $\Omega r$ , car la vitesse angulaire est  $\Omega$ . En supposant un profil de vitesse du fluide variant linéairement entre le disque et le cône, le gradient de vitesse vaut :

$$\dot{\gamma} = \frac{\Omega}{\tan \theta_o} \quad (3.2)$$



Cette approximation est valable dans le cas où  $\theta_0$  est inférieur à quelques degrés [80]. On constate ainsi que le cisaillement ne dépend pas de la distance à l'axe. Le fait de cisailier le fluide entre un cône et un plan est à l'origine d'une contrainte tangentielle  $\tau$  (constante au sein de l'échantillon). Cette contrainte est égale au rapport entre la force appliquée – provenant du couple  $C$  appliqué – et la surface d'application, ce qui donne directement la relation entre le couple appliqué et la contrainte selon :

$$\tau = \frac{12C}{\pi\phi^3} \quad (3.3)$$

Aux cisaillements élevés, des écoulements secondaires peuvent apparaître (avec la conséquence de mesures erronées de la viscosité) limitant ainsi la vitesse maximale de rotation [59]. Pour nous assurer que les valeurs de viscosité obtenues ne sont pas affectées par ces écoulements secondaires, nous vérifions que le nombre de Reynolds  $Re$  dans la périphérie de la géométrie, équation (3.4), est inférieur à 4 (limite approximative pour l'écoulement de transition) [81].

$$Re = \frac{\phi^2 \theta_0^2 \Omega \rho}{48\eta} \quad (3.4)$$

où  $\rho$  est la masse volumique du fluide.

Toutes les courbes d'écoulement ont été validées en calculant la valeur du  $Re$  pour les données obtenus au gradient de vitesse maximal.

Dans cette géométrie, la contrainte normale peut être déterminée grâce à la mesure de la force normale  $F_z$  exercée dans la direction de l'axe du cône par le fluide cisailé. En fait, un fluide élastique va exercer une force symétrique, équivalente à 2 fois  $F_z$  du fait qu'elle est exercée sur le cône et sur le plan, et qui va tenter d'écarter les deux parties de la géométrie. La première différence de contrainte normale  $N_1$  est à l'origine de cette force séparatrice exercée perpendiculairement à la surface et nous pouvons écrire :

$$N_1 = \frac{8F_z}{\pi\phi^2} \quad (3.5)$$

Cependant, la contrainte normale ainsi mesurée est aussi sujette aux effets d'inertie et d'écoulements secondaires, car les forces d'inertie tendent à « attirer » les plaques l'une vers l'autre, contrairement aux contraintes normales qui tendent à les séparer. Cette correction due à la force d'inertie est donnée par [82] :

$$F_{zi} = -0.0375\pi\rho\Omega^2\phi \quad (3.6)$$

et induit donc l'équivalent d'une contrainte normale négative. Ce résultat a été confirmé expérimentalement (Figure 50) avec les fluides newtoniens et est supposé rester valable aussi pour les fluides non newtoniens, nous reviendrons par la suite sur ces résultats.

### 3.1.2.b Caractérisation de la viscoélasticité

Pour quantifier le caractère viscoélastique des formulations choisies, nous mesurons trois caractéristiques. Il s'agit du temps de relaxation ( $\lambda$ ), du module de stockage ( $G'$ ) et du module de perte ( $G''$ ) du fluide.

Les méthodes pour mesurer la viscoélasticité linéaire des matériaux sont de deux types : statiques et dynamiques. Les essais statiques ont pour principe d'imposer une contrainte ou une déformation pour suivre le développement de la déformation ou de la contrainte résultante ; ils nous permettent de déterminer le temps de relaxation du fluide et le module élastique du matériau.

Les essais dynamiques consistent en l'application de déformations sinusoïdales de fréquence donnée, telles que la contrainte et le gradient de vitesse qui évoluent en fonction du temps ; les modules de stockage ( $G'$ ) et le module de perte ( $G''$ ) sont déterminés à travers cette méthode à l'instar du temps de relaxation du fluide.

#### *Essais statiques : L'essai de relaxation*

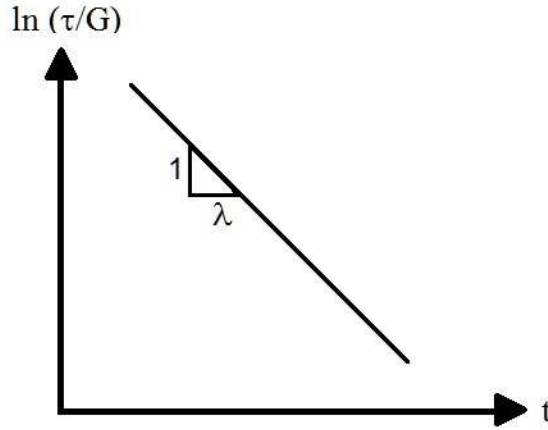
L'essai de relaxation consiste en la déformation instantanée du fluide, lequel va développer une contrainte qui décroît ensuite dans le temps. Le comportement est représenté par :

$$\frac{\tau}{\gamma} = Ge^{-t/\lambda} \quad (3.7)$$

Ce qui correspond à la solution du modèle de Maxwell pour une déformation imposée brutalement et que l'on peut également écrire :

$$\ln\left(\frac{\tau}{G}\right) = -\frac{t}{\lambda} \quad (3.8)$$

Et la représentation de la contrainte normalisée ( $\tau / G$ ) en fonction du temps permet de calculer le temps de relaxation  $\lambda$  du fluide (Figure 42)



**Figure 42 :** Détermination du temps de relaxation  $\lambda$  par un essai de relaxation

### *Essais dynamiques : l'essai oscillatoire*

L'application d'une déformation ou d'une contrainte oscillante est le principe de l'essai oscillatoire. Supposons que l'on impose une contrainte :

$$\tau(t) = \tau_0 \cos(\omega t) \quad (3.9)$$

où  $\tau_0$  est l'amplitude de la contrainte appliquée et  $\omega$  la fréquence d'oscillation. La réponse du système est mise en évidence par deux réponses : la première, en phase avec l'onde d'entrée, correspond au caractère élastique, suivant l'équation (2.2) :

$$\gamma = \frac{\tau}{G} = \frac{\tau_0}{G} \cos(\omega t) = \gamma_0 \cos(\omega t) \quad (3.10)$$

Ensuite, la réponse visqueuse du matériau suivant l'équation (2.1) :

$$\dot{\gamma} = \frac{\tau}{\eta} = \frac{\tau_0}{\eta} \cos(\omega t) \quad (3.11)$$

En intégrant l'équation (3.11) par rapport au temps on obtient :

$$\gamma = \frac{\tau_0}{\omega \eta} \sin(\omega t) = \frac{\tau_0}{\omega \eta} \cos(\omega t - \pi / 2) = \gamma_0 \cos(\omega t - \pi / 2) \quad (3.12)$$

qui montre que la déformation induite est en déphasage de  $\pi / 2$  par rapport à la contrainte. Si la réponse est partiellement déphasée d'une valeur  $\xi$  telle que  $(0 < \xi < \pi / 2)$ , nous sommes en présence d'un matériau viscoélastique. On peut alors écrire :

$$\gamma = \gamma_0 \cos(\omega t - \xi) \quad (3.13)$$

Sur ce genre de matériau, la réponse en phase avec la déformation appliquée est dite élastique ; et la réponse déphasée est dite visqueuse. Avec une représentation en nombres complexes pour la déformation et la contrainte, on obtient :

$$\tau(t) = \tau_0 \cos(\omega t) = R(\tau_0 e^{i\omega t}) \quad (3.14)$$

$$\gamma(t) = \gamma_0 \cos(\omega t - \xi) = R(\gamma_0 e^{i(\omega t - \xi)}) \quad (3.15)$$

Nous pouvons ainsi définir le module d'élasticité complexe :

$$G^* = \frac{\tau_0 e^{i\omega t}}{\gamma_0 e^{i(\omega t - \xi)}} = \frac{\tau_0}{\gamma_0} e^{i\xi} \quad (3.16)$$

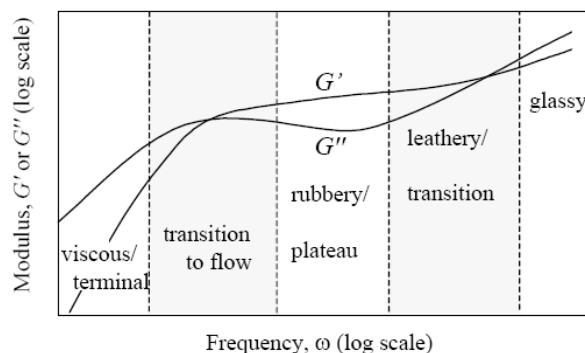
dont la forme trigonométrique est :

$$G^* = G' + iG'' = \frac{\tau_0}{\gamma_0} (\cos \xi + i \sin \xi) \quad (3.17)$$

$G'$  est défini comme le module de stockage qui caractérise le comportement élastique et  $G''$  défini comme le module de perte pour caractériser le comportement visqueux du matériau. Ces modules varient avec la fréquence des sollicitations appliquées et représentent les données caractéristiques de tout essai en oscillatoire. Dans les fluides réels, il faut compter avec des réponses pour ces modules qui peuvent comprendre jusqu'à cinq régions différentes (même si, dans la plupart des expériences, il est délicat de voir trois régions ou plus).

La zone I de la Figure 43 est mise en évidence aux fréquences très basses et le comportement visqueux est présent. La zone II dénote la transition vers le comportement élastique et la fréquence de transition est l'inverse du temps de relaxation selon le modèle de Maxwell. La zone III, où le comportement élastique est dominant, nous montre que les deux modules ont tendance à rester constants ou peu variables par rapport à la fréquence. La zone IV présente un deuxième temps caractéristique et la prédominance du comportement

visqueux revient dans le système. Pour finir, la zone V à un comportement « vitreux » et le module de perte augmente continûment.



**Figure 43** : Schéma de la réponse d'un fluide réel soumis à un essai oscillatoire. D'après [59]

### 3.1.2.c Mesure de la Viscosité élongationnelle

Une dernière propriété des formulations à mesurer est la viscoélasticité élongationnelle. Nous obtenons sa valeur en mesurant la chute de pression dans une géométrie induisant une déformation  $\epsilon$  constante grâce à d'une contraction hyperbolique planaire suivie d'une expansion hyperbolique planaire. L'aspect symétrique de la contraction est choisi, car l'écoulement d'un fluide visqueux à faible nombre de Reynolds peut être considéré comme réversible ; par conséquent, la chute de pression est la même en expansion et en contraction.

#### *Description de l'appareil Rheosense*

Les écoulements pour mesurer la viscosité élongationnelle décrits dans ce chapitre ont été réalisés à l'aide d'un appareil commercialisé par la société Rheosense. Cet équipement comprend une pompe « pousse-seringue » permettant d'imposer un débit constant à travers la géométrie d'écoulement (puce). La puce est fabriquée en Pyrex et montée sur une base de silicone recouverte d'or où sont placés les capteurs de pression. Chacun de ces capteurs couvre une surface carrée de  $800 \times 800 \mu\text{m}^2$ . Ce sont des capteurs à membranes dont la déflexion se traduit en variations de capacité électrique.

L'ensemble du dispositif est asservi par un boîtier de contrôle et piloté par un programme LabView. La puce EVROC (Figure 44) a une géométrie de contraction et

d'expansion hyperboliques. En ce qui concerne la puce à écoulement d'élongation, son fonctionnement a été validé par l'obtention d'un nombre de Trouton très proche de la valeur théorique de 4 en écoulement planaire pour des produits newtoniens.



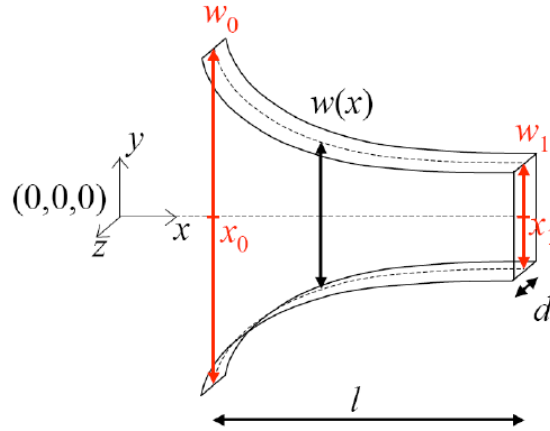
**Figure 44 :** Puce EVROC utilisé dans l'appareil Rheosense

Par ailleurs, l'appareil Rheosense est relativement facile d'emploi et ses mesures sont rapides sur des échantillons de faible volume. Une quantité de seulement 500  $\mu\text{l}$  permet la réalisation d'une mesure. Un autre avantage du dispositif par rapport à l'utilisation d'autres systèmes dits "microfluidiques" en élastomère (PDMS) ou résine est sa pérennité d'emploi. Les canaux ne s'altèrent pas, ni avec le temps ni avec le passage des échantillons.

Son inconvénient est qu'il ne permet pas la mise en place de moyens optiques pour obtenir des profils de vitesse. La répétabilité des mesures est limitée au taux d'élongation où la chute de pression est comprise entre 5 % et 90 % de la chute de pression maximale.

### ***Aspect géométrique de la cellule de mesure***

La géométrie est conçue de telle façon que l'épaisseur  $d$  est beaucoup plus petite que la largeur à l'entrée de la contraction  $w_0$  et que la longueur totale de la contraction  $l$ , c'est à dire,  $d \ll w_0, l$ . La largeur le long de la contraction  $w(x)$  est décrite par la relation  $w(x)=c/x$  ou  $c=l^2$  entre  $w_0$  et  $w_1$  (Figure 45). Les dimensions de la puce EVROC utilisée sont :  $w_0 = 3030 \mu\text{m}$ ,  $w_1 = 433 \mu\text{m}$ ,  $l = 800 \mu\text{m}$ ,  $d = 179 \mu\text{m}$ .



**Figure 45 :** Schéma de la contraction hyperbolique planaire, caractéristique de la puce EVROC.  
D'après [83]

La déformation de Hencky est donnée par la géométrie et le volume  $V$  de la contraction :

$$V = \int_{x=w_1}^{x=w_0} \left( \frac{c}{x} d \right) dx = cd \ln \left( \frac{w_0}{w_1} \right) \quad (3.18)$$

En faisant apparaître la déformation (voir chapitre 2.2.3)  $\varepsilon = \ln(w_0/w_1)$ , on obtient  $V = cd\varepsilon$

D'un autre côté, le taux d'élongation relatif dans la cellule est le rapport entre la vitesse du fluide dans la géométrie et la longueur :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\Delta v}{L} \quad (3.19)$$

Si l'on prend un plan  $z=\text{constante}$ , loin des parois, la vitesse  $v_{(x)}$  est constante dans la largeur du canal. Un taux d'élongation moyen peut donc être calculé à partir des vitesses moyennes par unité de longueur de la géométrie, en considérant un débit constant. Cela nous permet de caractériser l'écoulement d'élongation comme une fonction de la différence de vitesse par rapport à la longueur de passage associée [83].

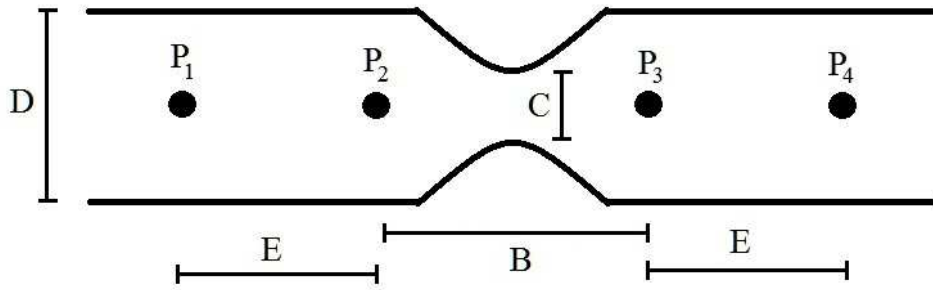
$$\dot{\varepsilon} = \frac{v_1 - v_0}{L} \quad (3.20)$$

$$\dot{\varepsilon} = \frac{Q}{dl} \left( \frac{1}{w_1} - \frac{1}{w_0} \right) \quad (3.21)$$

### Chute de pression dans la cellule

Pour un débit imposé, la pression dans la cellule est mesurée grâce aux 4 capteurs distribués dans la longueur (Figure 46). On suppose que la chute de pression entre les points 2 et 3 peut s'écrire sous la forme d'une somme de deux composantes : une composante résultant de l'écoulement d'élongation lié au rétrécissement ( $\Delta P_{ext}$ ) et une composante liée au cisaillement simple ( $\Delta P_{cis}$ ) qui reste important compte tenu que l'on a affaire à une cellule de type Hele-Shaw. On a donc :

$$P_2 - P_3 = \Delta P_{cis23} + \Delta P_{ext} \quad (3.22)$$



**Figure 46 :** Schéma de la répartition des capteurs de pression dans la longueur de la cellule EVROC. Les pressions mesurées sont P1, P2, P3 et P4. B, C, D et E sont les dimensions de la cellule.

Pour estimer  $\Delta P_{cis}$  on se base sur les écoulements aval et amont en considérant que la contrainte moyenne à la paroi est une moyenne des contraintes de ces deux écoulements.

$$\tau_{w23} = \frac{1}{2} (\tau_{w12} + \tau_{w34}) \quad (3.23)$$

Par ailleurs on sait que :

$$\frac{\Delta P_{23}}{B} = 2 \frac{\tau_{w23}}{d} \quad (3.24)$$

$$\frac{\Delta P_{12}}{E} = 2 \frac{\tau_{w12}}{d} \quad (3.25)$$



$$\frac{\Delta P_{34}}{E} = 2 \frac{\tau_{W34}}{d} \quad (3.26)$$

De toutes ces équations on déduit :

$$\Delta P_{cis} = \frac{A}{E} \left[ \frac{(P_1 - P_2)}{2} - \frac{(P_3 - P_4)}{2} \right] \quad (3.27)$$

La combinaison des équations (3.22) et (3.27), nous permet estimer la chute de pression uniquement liée aux effets élongationnels [83]:

$$\Delta P_{ext} = (P_2 - P_3) - \frac{A}{E} \left[ \frac{(P_1 - P_2)}{2} - \frac{(P_3 - P_4)}{2} \right] \quad (3.28)$$

Cette chute de pression en élongation provient de l'énergie dissipée par l'extension planaire du fluide au travers de la contraction et de l'expansion :

$$F_{ext} v_o = \int_V \boldsymbol{\Gamma}_{ext} : \boldsymbol{D}_{ext} . dV \quad (3.29)$$

Où  $F_{ext}$  est la force nécessaire pour produire l'écoulement d'élongation et  $v_o$  est la vitesse d'écoulement à l'entrée. En supposant que le taux de déformation est constant dans la partie contraction-expansion, nous supposons également que la contrainte d'élongation est constante telle que  $\boldsymbol{\Gamma}_{ext} : \boldsymbol{D}_{ext} = \tau_{xx} \dot{\gamma}_{xx} + \tau_{yy} \dot{\gamma}_{yy}$ . Ce qui nous laisse avec:

$$\Delta P_{ext} = \frac{V}{Q} (\tau_{xx} \dot{\gamma}_{xx} + \tau_{yy} \dot{\gamma}_{yy}) \quad (3.30)$$

En élongation planaire, si le taux de déformation est constant,  $\dot{\gamma}_{xx} = -\dot{\gamma}_{yy} = \dot{\epsilon}$ , ce qui nous permet finalement de relier la chute de pression dans la géométrie à la différence de contraintes normales du fluide,

$$\Delta P_{ext} = \frac{V}{Q} N_1 \dot{\epsilon} \quad (3.31)$$

En conjonction avec l'équation pour  $N_1$  du chapitre 2, nous calculons la viscosité élongationnelle planaire :

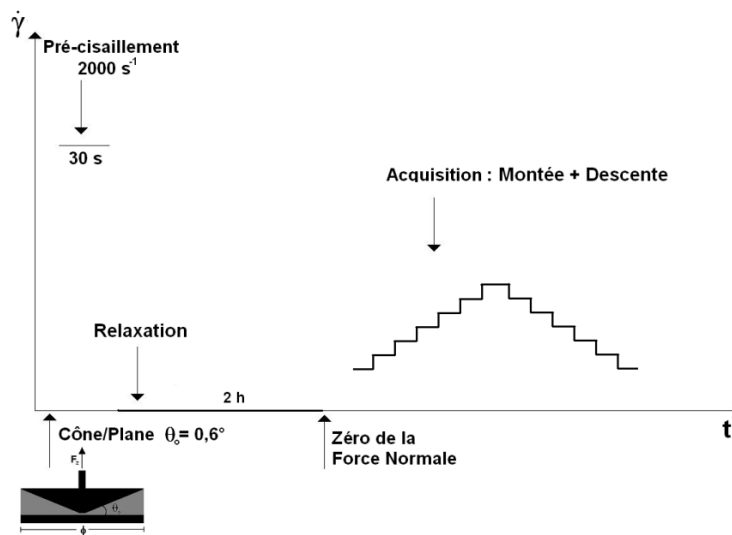
$$\eta_{EP}(\dot{\epsilon}) = \frac{\Delta P_{ext} Q}{V \dot{\epsilon}^2} \quad (3.32)$$

Toute l'analyse est valide pour un fluide newtonien ; dans le cas d'une solution de polymères, la déformation de cisaillement apporte une contribution à la première et à la deuxième différence de contraintes normales recueillie par les capteurs de pression. Du fait que la contraction hyperbolique est symétrique (et que les capteurs de pression sont aussi situés de façon symétrique), il est possible d'affirmer que les contraintes normales additionnelles s'annulent mutuellement [83]; de même, les contraintes normales dues au cisaillement ne contribuent pas à l'augmentation de la chute de pression.

Dans ces conditions on constate que l'équation (3.32) fournit une très bonne approximation de la viscosité élongationnelle d'un fluide.

### 3.1.2.d Procédure expérimentale :

La caractérisation des formulations consiste à mesurer  $\eta$  et  $N_1$  puis les caractéristiques élastiques ( $G'$ ,  $G''$  et  $\lambda$ ) pour finir avec la viscosité élongationnelle.  $\eta$  et  $N_1$  sont obtenues en utilisant le protocole présenté dans la Figure 47 :



**Figure 47 :** Protocole de mesure pour établir la courbe d'écoulement des formulations

#### ***Protocole de mesure (Courbe d'écoulement):***

1) L'échantillon est chargé sur la géométrie cône-plan de diamètre  $\phi = 4$  cm et d'angle  $2^\circ$  du rhéomètre AR2000. La température est stabilisée. Tous les essais rhéométriques ont été réalisés à  $25^\circ\text{C}$ .

2) Un précisaillement durant 30 s est imposé avec un gradient de vitesse de  $2000 \text{ s}^{-1}$  pour établir un état initial uniforme pour tous les échantillons, alors que la gamme de gradients de vitesse étudié ensuite s'étend jusqu'à  $1000 \text{ s}^{-1}$ .

3) L'échantillon est ensuite laissé au repos jusqu'à la stabilisation de la contrainte normale. Les valeurs de la contrainte normale au cours du temps sont enregistrées et pour chaque famille de formulations (PAM, PEG-PEO, PIB-PIB) correspond un temps de repos particulier que nous avons déterminé.

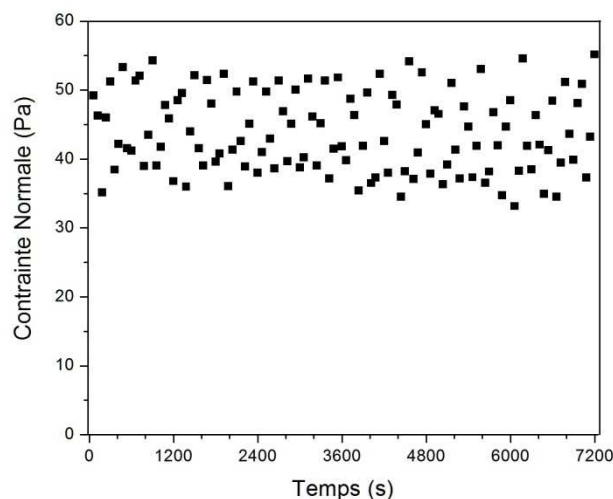
4) Au bout de ce temps de repos (par exemple 180 min pour les formulations base PAM), le capteur de force normale est remis à zéro ( $N_1=0 \text{ Pa}$ ).

5) Ensuite, la procédure d'acquisition est déclenchée ; le gradient de vitesse est imposé par paliers qui montent progressivement croissant entre  $0,01 \text{ s}^{-1}$  et  $1000 \text{ s}^{-1}$  et chaque point de la courbe d'écoulement est mesure dans les conditions suivantes :

- a) Le gradient de vitesse est imposé pendant un temps maximal de 3 min.
- b) La viscosité est moyennée sur 30 s (qui permet un maximum de 6 acquisitions par point).
- c) Dès que la viscosité de 3 points consécutifs est en-dessous d'une tolérance établie (3 %), les données sont enregistrées.

6) La mesure de la contrainte normale est réalisée en parallèle avec celle de la viscosité ; des valeurs mesurées inférieures à 80 Pa présentent une incertitude de  $\pm 10 \text{ Pa}$  centrée sur une valeur moyenne ; nous attribuons cette incertitude à la sensibilité du capteur de force (Figure 48). Une attention particulière a été prêtée à ce sujet, afin d'écarter des effets inertiels qui pourraient interférer avec les résultats. Une description plus complète de l'acquisition des contraintes normales sera abordée dans la caractérisation détaillée des formulations.

7) Le point 5 est répété avec deux rampes additionnelles (en descente depuis  $100 \text{ s}^{-1}$  et à nouveau en montée à partir de  $0,01 \text{ s}^{-1}$ ) afin de vérifier que les fluides ne présentent pas de propriétés thixotropes [80].



**Figure 48 :** Suivi des forces normales dans un fluide de Boger à  $80 \text{ s}^{-1}$  de gradient de vitesse.  $N_1$  en fonction du temps.

#### **Remarques complémentaires :**

- Tous les échantillons ont été caractérisés trois fois et suivis pendant 30 jours pour connaître leur stabilité et la répétitivité des mesures. La courbe d'écoulement et la première différence de contraintes normales sont tracées pour établir le comportement de la formulation.

- Les courbes d'écoulement ont été réalisées en imposant la contrainte au lieu du gradient de vitesse et comparées pour vérifier que les résultats sont similaires.

La deuxième partie de la caractérisation consiste ensuite en la détermination des modules de stockage ( $G'$ ) et de perte ( $G''$ ) ainsi que du temps de relaxation  $\lambda$  du fluide.

#### ***Protocole de mesure (régime oscillatoire) :***

1) L'échantillon est chargé sur la géométrie cône-plan de diamètre  $\phi = 4 \text{ cm}$  et d'angle  $2^\circ$  du rhéomètre AR2000. La température est stabilisée.

2) Un précisaillement durant 30 s est imposé avec un gradient de vitesse de  $2000 \text{ s}^{-1}$  pour établir l'état initial uniforme.

3) Une déformation est imposée en balayant la gamme – entre 1 % et 1000 % – à deux fréquences différentes (1 Hz et 10 Hz). Ces fréquences ont été choisies en fonction des ordres de grandeur du temps de relaxation que l'on attend de l'ensemble des formulations.

4) Les modules de stockage ( $G'$ ) et de perte ( $G''$ ) sont tracés en fonction de la déformation pour les deux fréquences  $f$  choisies. La série de déformations où les modules sont constants, connue comme la zone de régime linéaire, nous permet de choisir une déformation caractéristique pour réaliser la caractérisation. Toute caractérisation d'un fluide viscoélastique est effectuée dans ce régime linéaire [47].

5) Avec l'application de la déformation choisie (point 4), un balayage en fréquences est réalisé, entre 0,01 Hz et 100 Hz (limite de détection de l'appareil). Le profil de  $G'(f)$  et  $G''(f)$  est tracé. Le temps de relaxation  $\lambda$  est déterminé, représenté comme l'inverse de la fréquence où les courbes de  $G'$  et  $G''$  se sont interceptées.

Enfin, pour vérifier le temps de relaxation du fluide – qui, dans certaines conditions, ne peut pas être déterminé par la méthode précédemment présentée –, les essais de démarrage, de fluage ou de relaxation sont utilisés comme complément. (Cela donne un temps de relaxation légèrement différent, mais toujours dans la gamme de celui donné par l'essai oscillatoire)

### ***Protocole de mesure (viscosité élongationnelle) :***

1) L'échantillon est chargé dans une seringue en verre, laquelle est placée dans le pousse-seringue dont le débit est piloté par le logiciel de l'appareil Rheosense. Le diamètre de la seringue est choisi en fonction de la viscosité de cisaillement du produit et du débit maximal à imposer dans la cellule. Cette sélection permet d'optimiser la quantité nécessaire du fluide pour un essai déterminé et permet en même temps de s'assurer du choix d'une série de chutes de pression supportée par la cellule.

2) Nous prenons comme débit maximal à imposer le débit qui produit un taux d'élongation équivalent au gradient de vitesse maximal que nous pouvons obtenir dans la cellule de Hele Shaw ( $750 \text{ s}^{-1}$ ), c'est-à-dire  $\dot{\epsilon} = 325 \text{ s}^{-1}$ . Dès que le pousse-seringue est chargé, nous procédons à un balayage en débit. Pour chaque débit, la pression dans les quatre capteurs de la cellule est enregistrée jusqu'à la stationnarité de la mesure ou jusqu'à atteindre la durée maximale de mesure (caractéristique pour un débit quelconque, qui correspond à 50 mesures de viscosité). Si le temps maximal est atteint, il est nécessaire de procéder à une vérification des pressions acquises dans la cellule pour valider une expérience.

3) Pour chaque fluide, les expériences ont été doublées, et ce en commençant toujours par le débit le plus élevé pour descendre jusqu'au débit qui correspond à 5 % de la chute de pression maximale dans la cellule (limite d'incertitude de l'appareil).

4) Avec les pressions enregistrées dans les capteurs, nous procédons à la détermination du taux d'élongation critique et au calcul de la viscosité élongationnelle des échantillons.

### 3.1.2.e Caractérisation détaillée des formulations choisies

#### *Formulations PAM-CAN :*

Le modèle rhéologique choisi pour caractériser la loi de comportement de ces formulations PAM-6000 et PAM-4000 est celui de Carreau [84] :

$$\eta = \frac{\eta_0}{\left[1 + (k\dot{\gamma})^2\right]^{\frac{n}{2}}} \quad (3.33)$$

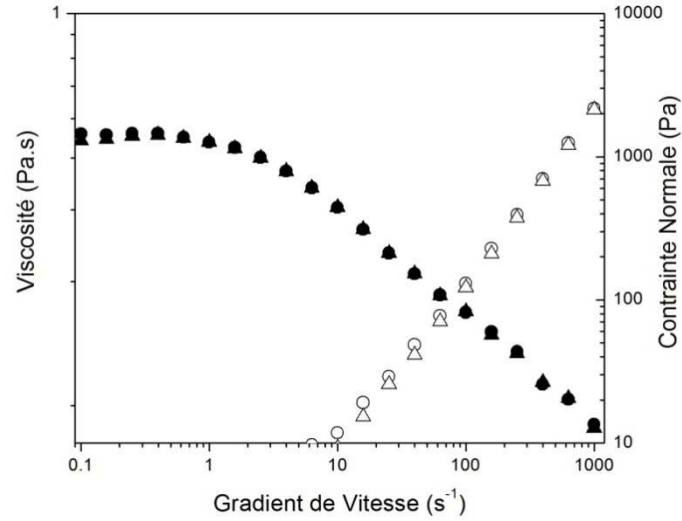
avec  $\eta_0$  la viscosité à taux de cisaillement nul (en Pa.s),  $k$ , la consistance (en s) et  $n$  = l'exposant de fluidité tel que nous pourrions calculer la viscosité apparente des fluides en fonction du gradient de vitesse appliqué (Tableau 7).

Formulation	$\eta_0$ (Pa.s)	$k$ (s)	$n$
PMA-CAN-6000	0,492	0,23	0,31
PMA-CAN-4000	0,184	0,242	0,19

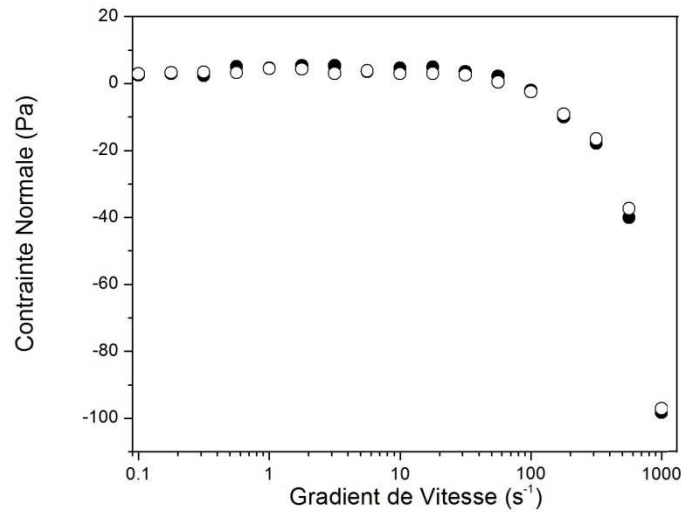
**Tableau 7 :** Tableau des paramètres pour le modèle rhéologique des formulations PAM

Pour valider les résultats de la courbe d'écoulement de la figure 3.6, la première différence de contraintes normales,  $N_1$  est mesurée par paliers de gradient de vitesse constante jusqu'à stationnarité dans une expérience d'« aller-retour » (Figure 49). Cette procédure est similaire à celle qui a été proposée pour mesurer la viscosité des échantillons. En complément, une expérience conduite en « aller-retour » sans polymère (Figure 50) nous montre que les effets inertiels évoqués auparavant, dans l'équation (3.6), sont négligeables par rapport à la magnitude des contraintes normales des solutions des polymères. Ces effets, comprennent un écart d'à peine quelques Pa par rapport à la valeur de  $N_1$  mesurée avec les

fluides PAM à gradient de vitesse faible, et restent négligeables par rapport aux valeurs de  $N_1$  de toutes les formulations à gradient de vitesse élevé (plusieurs centaines de Pa).

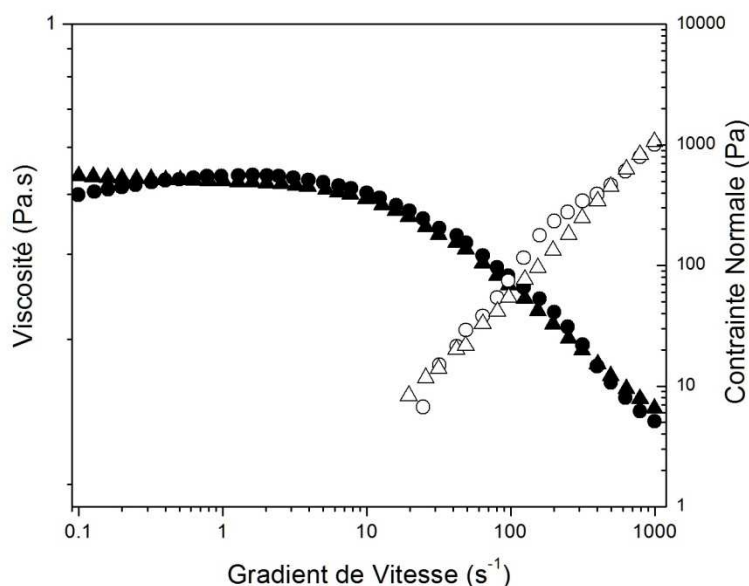


**Figure 49 :** Suivi du comportement rhéologique de la formulation PAM-6000 en « aller-retour » pour étudier la thixotropie du fluide.  $\eta$  (●) et  $N_1$  (○) (aller) ainsi que  $\eta$  (▲) et  $N_1$  (△) (retour) en fonction de gradient de vitesse.



**Figure 50 :** Mesure des contraintes normales en « aller (●)- retour (○) » pour une solution dépourvue de polymère.  $N_1$  est mesuré en fonction du gradient de vitesse

La stabilité des propriétés rhéologiques a été aussi vérifiée dans le temps, en mesurant la courbe d'écoulement après 1 mois. La Figure 51 nous montre que les différences dans cet intervalle de temps sont négligeables.

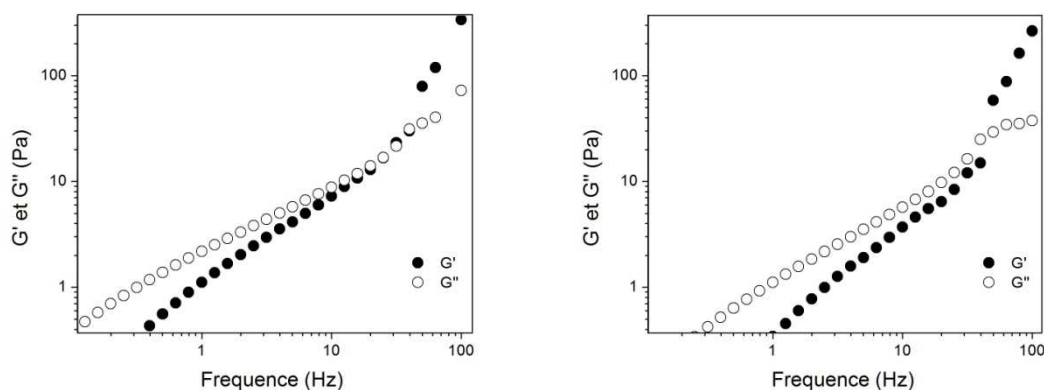


**Figure 51 :** La viscosité (●) et première différence de contrainte normale (○) pour la formulation PAM-6000 datant de 30 jours se trouvent dans un écart raisonnable par rapport à la viscosité (▲) et première différence de contrainte normale (△) pour la formulation PAM-6000 datant de 1 jour.

Dans les essais en oscillatoire, nous remarquons qu'aux faibles fréquences, le comportement est principalement visqueux ( $G''$  prévaut sur  $G'$ ), et, à haute fréquence, la réponse est élastique ( $G'$  prévaut sur  $G''$ ). Le temps de relaxation est considéré dans ces graphes comme l'inverse de la fréquence de croisement entre  $G'$  et  $G''$ .

Nous estimons ainsi le temps de relaxation du fluide à  $2 \cdot 10^{-2}$  s pour le PMA-4000 et  $4 \cdot 10^{-2}$  s pour le PMA-6000. L'inertie du rhéomètre ne permet pas de travailler à des fréquences plus élevées que 100 Hz, et nous devons donc nous cantonner à cette limite. (Figure 52)

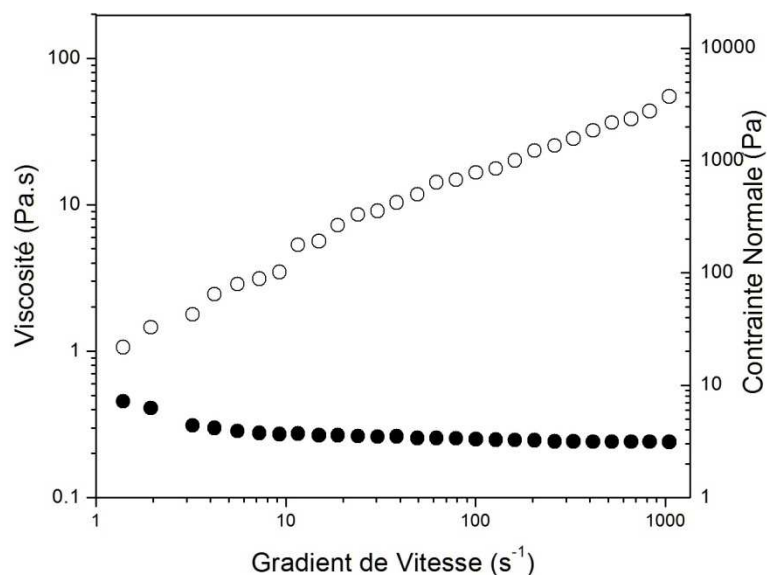




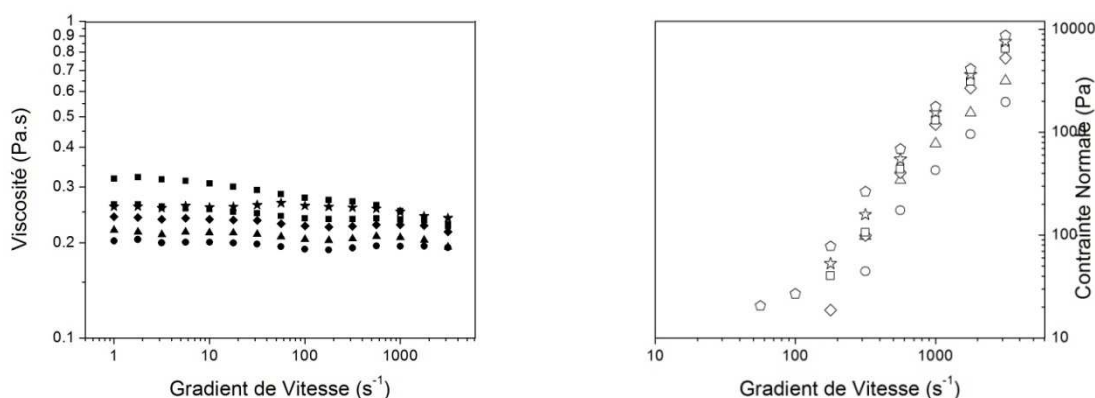
**Figure 52:** Essais en oscillatoire des formulations PMA-6000 à gauche ( $G'$  ●  $G''$  ○) et à droite PMA-4000 ( $G'$  ●  $G''$  ○).  $G'$  et  $G''$  en fonction de la fréquence pour une déformation de 20%

### ***Formulations PEG-PEO :***

Une caractérisation similaire a été réalisée sur plusieurs formulations du système PEG-PEO. D'abord un fluide avec PEO de masse moléculaire  $8 \cdot 10^6$  g/mol (Figure 53) et ensuite plusieurs fluides avec PEO de masse moléculaire  $4 \cdot 10^6$  g/mol, (entre 500 ppm et 3000 ppm) dont un résumé est présenté dans la Figure 3.24 :

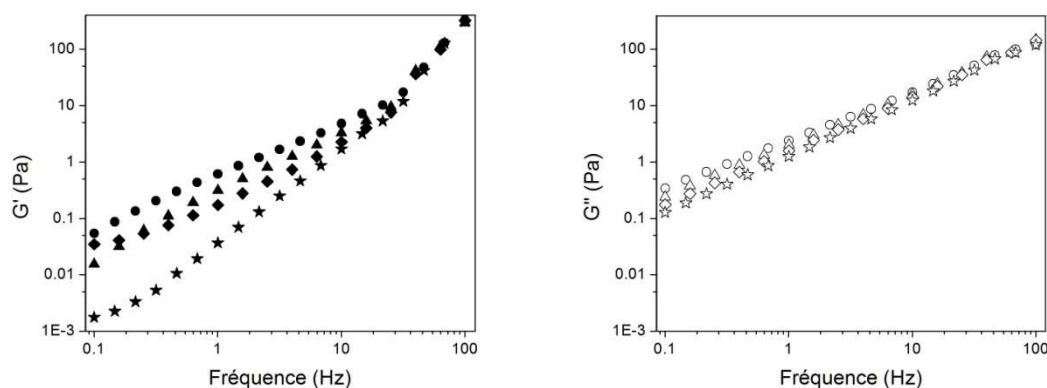


**Figure 53 :** Courbe d'écoulement de la formulation 50 % PEG et 800 ppm PEO de MW =  $8 \cdot 10^6$  g/mol.  $\eta$  (●) et  $N_1$  (○) en fonction de gradient de vitesse.



**Figure 54 :** Formulations 50 % PEG avec différents concentrations de PEO MW =  $4 \cdot 10^6$  g/mol. A gauche, la viscosité en fonction du gradient de vitesse pour 3000 ppm (◆), 2000 ppm (★), 1500 ppm (■), 1000 ppm (◇) 500 ppm (▲) et 250 ppm (●). A droite  $N_1$  en fonction du gradient de vitesse pour 3000 ppm (△), 2000 ppm (☆), 1500 ppm (□), 1000 ppm (◇) 500 ppm (△) et 250 ppm (○)

Les modules  $G'$  et  $G''$  pour des formulations PEG-PEO sectionnées sont montrées dans la Figure 55. Le temps de relaxation des fluides obtenu (corroboré par un essai de relaxation) est de 0,28 s pour le PEG-PEO8-800 ; 0,12 s pour le PEG-PEO4-2000; 0,058 s pour le PEG-PEO4-1000 et 0,02 s pour le PEG-PEO4-500.



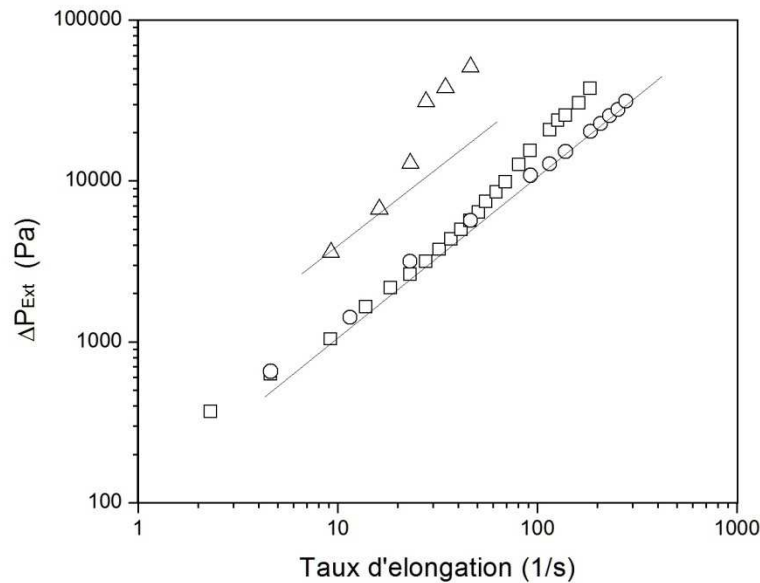
**Figure 55 :** Essais en oscillatoire des formulations PEG-PEO4. A gauche  $G'$  pour : pour 3000 ppm PEO (●), 2000 ppm PEO (▲), 1000 ppm (◆) et 500 ppm (★). A droite,  $G''$  pour : pour 3000 ppm PEO (○), 2000 ppm PEO (△), 1000 ppm (◇) et 500 ppm (☆).  $G'$  et  $G''$  en fonction de la fréquence pour une déformation de 20%.

### **Formulations PIB-PIB :**

En comparaison des rhéogrammes obtenus avec les formulations précédentes, nous constatons une viscosité environ 10 fois plus élevée par rapport aux formulations de PAM et des forces normales entre 10 et 100 fois plus grandes (Figure 37). La possibilité d'obtenir une variation plus étendue des paramètres était donc envisageable avec ces formulations de PIB. Cependant, nous verrons qu'il n'y a pas été possible de faire des expériences de déplacement avec ce fluide.

### **Viscosité élongationnelle des formulations PAM et PEG-PEO**

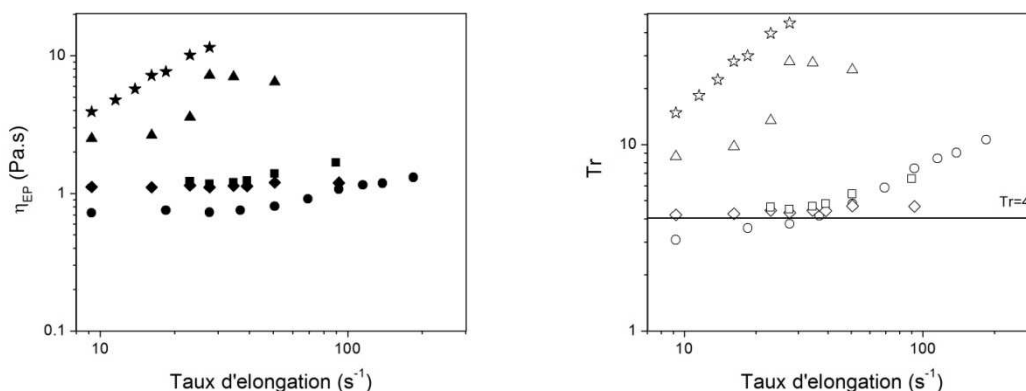
Dans la cellule élongationnelle, nous avons testé initialement le fluide newtonien de référence (Canadou), et deux fluides modèles (PAM6000 et PEG-PEO8). Si on représente la chute de pression en fonction du taux d'élongation, nous attendons des chutes de pression linéaires quand les fluides sont dans un régime de fluide newtonien (là où les contraintes normales ne sont pas développées). Nous constatons ainsi que, pour le fluide newtonien, la chute de pression est linéaire dans toute la série de taux d'élongation. Dans les deux autres formulations, la chute de pression augmente de façon non linéaire (Figure 56).



**Figure 56 :** Chute de pression dans la cellule d'élongation plane en fonction du gradient de vitesse pour le Canadou (○), PAM6000 (□) et PEG-PEO8-800 (△).

Pour le système PAM-6000, la non-linéarité commence à être évidente pour des taux d'élongation au-delà de  $30 \text{ s}^{-1}$ , ce qui est en accord avec l'apparition des contraintes normales en cisaillement simple, car ce taux d'élongation est comparable à un gradient de vitesse de  $60 \text{ s}^{-1}$  (où les forces normales commencent à se développer). Dans le cas du système PEG-PEO, il ne semble pas qu'un régime linéaire s'établisse et la chute de pression est plus élevée que celle du PAM6000 ou du Canadou au même taux d'élongation. Ceci peut être expliqué en fonction de l'apparition des contraintes normales, car cette formulation développe des contraintes normales à partir de gradients de vitesse très faibles.

Nous avons ensuite calculé la viscosité élongationnelle et le nombre de Trouton pour des formulations viscoélastiques sélectionnées (Figure 57). Nous pouvons constater, à la différence des observations de Walters et Jones [34], que la viscosité élongationnelle pour la formulation PAM-6000 n'augmente pas de façon significative avec le taux d'élongation alors que dans la même gamme de gradients de vitesses, les contraintes normales augmentent d'un ordre de grandeur. En revanche, pour les formulations PEG-PEO, la valeur de viscosité élongationnelle augmente avec la concentration du PEO (cas des formulations PEO4) et avec la masse moléculaire du PEO.

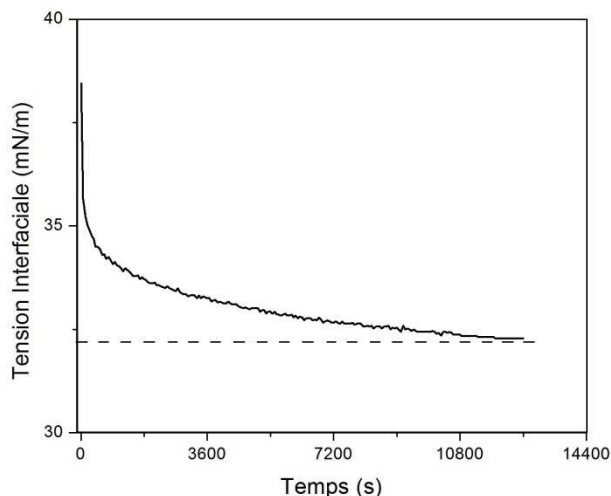


**Figure 57 :** A gauche, viscosité élongationnelle en fonction du taux d'élongation pour le PAM6000 (●), PEG-PEO8-800 (▲), PEG-PEO4-250 (◆), PEG-PEO4-500 (■) et PEG-PEO4-2000 (★). A droite, le nombre de Trouton en fonction du taux d'élongation pour le PAM6000 (○), PEG-PEO8-800 (△), PEG-PEO4-250 (◇), PEG-PEO4-500 (□) et PEG-PEO4-2000 (☆).

### *Tension interfaciales des formulations :*

La tension interfaciale entre les différentes formulations et l'huile silicone a été. Les mesures ont été effectuées avec un tensiomètre à plaque TK100 KRUS, en utilisant un temps

d'équilibration jusqu'à obtenir une valeur à peu près constante (en fait on observe une chute continue sur la durée de nos mesures, voir un exemple dans la Figure 58). Nous constatons avec les résultats présentés dans le Tableau 8, que l'introduction de PMA et PEG-PEO a tendance à diminuer légèrement la tension interfaciale (24 % de variation entre le système newtonien et PMA-6000).



**Figure 58** : Tension interfaciale en fonction du temps pour la formulation PAM-4000. La valeur retenue pour la tension est associée au niveau du « plateau » (ligne pointillée).

Deux formulations de faible tension interfaciale ont été préparées en ajoutant un tensioactif dans la phase huile (SPAN 80) de façon à ne pas affecter les viscosités des formulations originales.

Système	Tension interfaciale (mN/m)	Temps Équilibration (min)
Canadou/HS	34,5	120
PMA-4000/HS	32,3	210
PMA-6000/HS	26,1	360
PEG-PEO8-800/HS	38,2	420
Canadou/HS+ Span80	3,1	30
PMA-6000/HS+ Span 80	2,8	35

**Tableau 8** : Tension interfaciale des formulations choisies

### 3.1.2.f Résumé des propriétés pour les formulations utilisées dans les expériences de déplacement :

En conclusion de ce chapitre nous présentons un résumé des propriétés pour les fluides décrits en détail ci-dessus (Tableau 9). Les modèles utilisés pour représenter la viscosité des formulations PAM et Xanthane ont été mentionnés auparavant, la viscosité des formulations PEG-PEO est considérée constante. La viscosité élongationnelle des formulations PAM-6000, PEG-PEO4-250 et PEG-PEO4-500 est considérée constante mais celle des formulations PEG-PEO4-2000 et PEG-PEO8-800 est représentée par une loi de puissance.

Formulation	$\eta (\dot{\gamma})$ [Pa.s]	$N_1 (\dot{\gamma})$ [Pa]	$\eta_{EP} (\dot{\epsilon})$ [Pa.s]	$\sigma$ [mN/m]*	$\lambda$ [s]
PAM-6000	$\frac{0,492}{(1 + 0,0529\dot{\gamma}^2)^{0,155}}$	$0,21\dot{\gamma}^{1,272}$	0,9	26,1	0,04
PAM-4000	$\frac{0,184}{(1 + 0,0586\dot{\gamma}^2)^{0,095}}$	$0,06\dot{\gamma}^{1,3735}$	***	32,3	0,02
PEG-PEO8-800	0,26	$23,42\dot{\gamma}^{0,738}$	$0,117\dot{\epsilon}^{0,527}$	38,2	0,28
PEG-PEO4-3000	0,29	$0,036\dot{\gamma}^{1,687}$	***	**	***
PEG-PEO4-2000	0,26	$1,083\dot{\gamma}^{1,193}$	$0,183\dot{\epsilon}^{0,539}$	**	0,12
PEG-PEO4-1000	0,24	$0,0012\dot{\gamma}^{1,945}$	***	**	0,058
PEG-PEO4-500	0,22	$0,026\dot{\gamma}^{1,4694}$	1,2	**	0,02

\* Tension interfaciale avec l'huile de silicone

\*\* Non mesurée

\*\* Non déterminé

**Tableau 9 :** Résumé des propriétés des fluides à utiliser dans les expériences d'écoulement

## 3.2 Géométrie d'expérimentation

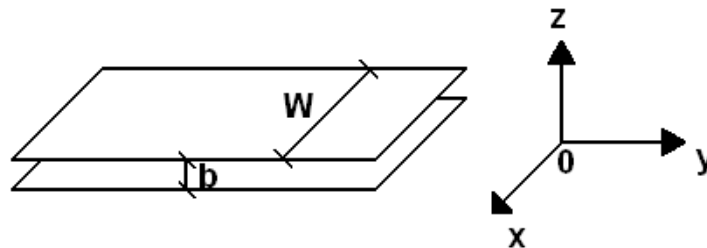
Pour aborder d'un point de vue fondamental l'influence de la viscoélasticité sur la récupération assistée du pétrole, nous avons étudié des systèmes dans lesquels une phase aqueuse (viscoélastique) déplace l'huile initialement contenue dans des géométries simples.

La géométrie la plus simple qui permet une telle approche est une géométrie de type Hele-Shaw ; ce système bien connu a été abondamment utilisé dans l'étude du phénomène de digitation visqueuse [9] et il présente plusieurs avantages pour atteindre notre objectif, entre autres :

- Il permet a priori de représenter l'écoulement en milieux poreux par un écoulement en 2D.
- En choisissant un matériau constitutif de la cellule transparente tel que le verre, le phénomène est visualisable sur toute la longueur de la cellule.
- Grâce à un dimensionnement approprié, la géométrie permet d'étudier une gamme étendue de paramètres et notamment de nombres capillaires.

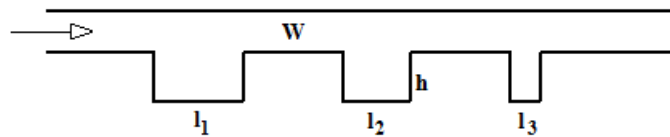
### 3.2.1 La géométrie de Hele-Shaw

La cellule de Hele-Shaw (Figure 59) est une géométrie rectangulaire dotée d'un grand rapport d'aspect largeur-épaisseur ( $R$ ) qui représente un système quasi bidimensionnel. Cette cellule est généralement constituée de deux plaques séparées par un intervalle dont l'épaisseur  $b$  est petite par rapport à la largeur  $W$  de la cellule.



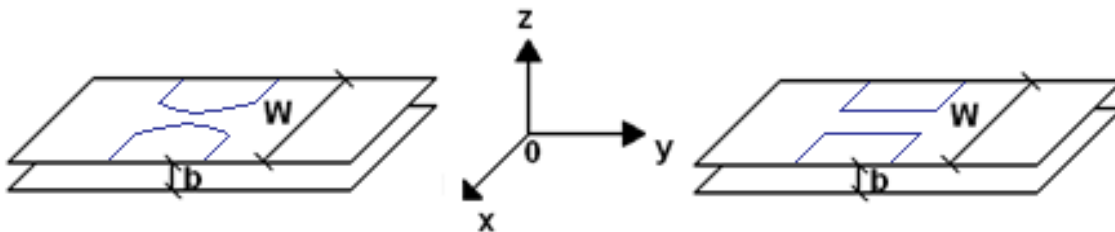
**Figure 59** : Schéma de la Cellule de Hele Shaw

Dans une seconde phase, pour nous rapprocher des conditions réelles d'écoulement dans des pores, nous avons réalisé des essais dans des microcanaux (quelques centaines de micromètres), avec un écoulement principal connecté à trois dérivation latérales de différentes tailles ( $l_1, l_2, l_3$ ) celles-ci ont pour objectif de représenter des *dead end pores* [46], c'est-à-dire des dérivation le long d'un canal droit qui se finissent en impasse. Un schéma de cette géométrie est montré dans la Figure 60.



**Figure 60** : Schéma de géométrie avec des microcanaux.

Une dernière approche nous a conduit à mettre en place des restrictions dans la géométrie de Hele Shaw originale pour représenter approximativement les resserrements et élargissements que l'on trouve partout dans un milieu poreux. Les deux restrictions choisies sont : une restriction rectangulaire pour simuler une contraction brusque de la section d'écoulement et une contraction-expansion hyperbolique (Figure 61) pour simuler un changement graduel de la section d'écoulement.



**Figure 61** : Schéma des restrictions dans la cellule. À gauche restriction hyperbolique, à droite restriction rectangulaire

Nous allons étudier le déplacement d'un fluide newtonien (dans notre cas de l'huile de silicone) par un autre fluide newtonien ou viscoélastique, obtenu à partir des formulations de la section 3.1. Dans la suite, nous abordons les aspects de modélisation de ces écoulements de façon à identifier les paramètres permettant l'interprétation des résultats.



### 3.2.1.a Profil de vitesse dans la géométrie de Hele-Shaw

Commençons par établir le profil de vitesse dans une géométrie Hele Shaw avec un rapport d'aspect  $R = W / b$  infini où s'écoule un fluide newtonien ; l'écoulement dans cette géométrie est régi par les équations de Navier-Stokes (3.34) et l'équation de continuité à densité constante (3.35) :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = -\vec{\nabla} P + \eta \vec{\nabla}^2 \vec{v} + \rho g \quad (3.34)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0 \quad (3.35)$$

En écoulement stationnaire, la partie gauche de l'équation (3.34) disparaît, avec  $-\vec{\nabla} P + \rho g = -\Delta P / L$ . Ce qui nous donne :

$$\frac{\Delta P}{L} = \eta \vec{\nabla}^2 \vec{v} \quad (3.36)$$

le mouvement a lieu uniquement dans la direction  $y$  avec une contrainte de cisaillement principale  $\tau_{zy} = \vec{\nabla}^2 \vec{v} = d^2 v_y / dz^2$ . L'intégration de cette expression pour obtenir la vitesse  $v_z$  génère deux constantes  $C_1$  et  $C_2$  :

$$v_y = \frac{\Delta P}{2\eta L} z^2 + C_1 z + C_2 \quad (3.37)$$

La condition de non-glissement aux parois ( $v_y = 0$  si  $z = \pm b/2$ ) nous permet d'aboutir à la distribution de Poiseuille :

$$v_y(z) = -\frac{\Delta P}{2\eta L} \frac{b^2}{4} \left[ 1 - \left( \frac{2z}{b} \right)^2 \right] \quad (3.38)$$

Ceci représente le profil de vitesse dans le plan  $yz$  pour une cellule de Hele Shaw de rapport d'aspect infini. L'intégration du champ de vitesse entre 0 et  $b$  nous donne une vitesse moyenne :

$$\bar{V} = -\frac{b^2}{12\eta} \frac{\Delta P}{L} \quad (3.39)$$

Cette équation est équivalente à la loi de Darcy à travers la cellule, qui relie la vitesse moyenne  $\bar{V}$  de l'écoulement au gradient de pression  $-\vec{\nabla} P$  avec  $Re \ll 1$ .

Si le rapport d'aspect est fini, la vitesse est également une fonction de  $x$  telle que  $v_y = v_y^*(z) + v_y^{**}(x, z)$ . Le premier terme correspond à la solution de l'équation (3.38). Le deuxième prend en compte les parois situées à  $x = \pm W/2$  et satisfait l'équation de Laplace pour la vitesse telle que  $\nabla^2 v_y^{**}(x, z) = 0$  avec deux conditions de bord, à savoir :

$$v_y^{**}(x, \pm b/2) = 0 \quad (3.40)$$

$$v_y^{**}(\pm W/2, z) = -\frac{\Delta P}{2\eta L} \frac{b^2}{4} \left[ 1 - \left( \frac{2z}{b} \right)^2 \right] \quad (3.41)$$

Une décomposition de Fourier pour  $v_y$  avec les conditions de bord indiquées ci-dessus conduit à la distribution de vitesse suivante [85] :

$$v_y(x, z) = -\frac{\Delta P}{8\eta L} b^2 \left\{ \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \frac{32}{(2n-1)^3 \pi^3} \frac{\cosh((2n-1)\pi(z/b))}{\cosh((2n-1)\pi/2(W/b))} \cos\left((2n-1)\pi \frac{x}{b}\right) + \left[ 1 - \left( \frac{2z}{b} \right)^2 \right] \right\} \quad (3.42)$$

Ce champ de vitesse correspond à celui d'un fluide newtonien qui s'écoule par l'effet d'un gradient de pression dans une cellule de Hele Shaw avec un rapport d'aspect fini et nous servira de point de référence pour l'analyse de nos expériences.

### ***Gradient de vitesse dans la cellule de Hele Shaw***

Il est important d'estimer le gradient de vitesse auquel seront soumises les différentes phases pendant l'écoulement dans la cellule. Cette grandeur, qui est variable dans la largeur et dans l'épaisseur de la cellule, peut être quantifiée par un gradient de vitesse moyen et un gradient de vitesse maximum s'exerçant à la paroi de la cellule.

en dérivant le champ de vitesse de Poiseuille, on obtient le gradient de vitesse :

$$\dot{\gamma} = \frac{dV_y}{dz} = (b - 2z) \frac{\Delta P}{2\eta L} \quad (3.43)$$

En moyennant l'équation (3.43) entre 0 et  $b$ , on obtient un **gradient de vitesse moyen**  $\bar{\dot{\gamma}}$ , dans l'épaisseur :

$$\bar{\dot{\gamma}} = \frac{3V}{b} \quad (3.44)$$

ce gradient de vitesse moyen permet de caractériser l'écoulement d'une façon globale. Remarquons que le gradient de vitesse est maximum à la paroi  $\dot{\gamma}_w = \Delta P b / 2\eta L = \tau_w / \eta$  et nul dans le plan de symétrie  $z = b / 2$  de la cellule (les vitesses  $v_y$  étant maximales dans ce plan).

Un équilibre des forces nous amène à la relation suivante entre le débit  $Q$  et la chute de pression dans la cellule :

$$\frac{b\Delta P}{2L} = \eta \frac{6Q}{Wb^2} \quad (3.45)$$

Ce qui nous permet de réécrire le gradient de vitesse a la paroi en fonction du débit :

$$\dot{\gamma}_w = \left( \frac{6Q}{Wb^2} \right) \quad (3.46)$$

Cependant, comme le rapport d'aspect  $R$  de notre cellule est fini, la contrainte tangentielle réelle aux parois est :

$$\tau_w = \frac{\Delta P(Wb)}{(2WL + 2bL)} \quad (3.47)$$

Et une correction a l'équation (3.39) doit être apportée [86] :

$$\dot{\gamma}_w = \left( \frac{6Q}{Wb^2} \right) \left( 1 + \frac{b}{W} \right) (f^*) \quad (3.48)$$

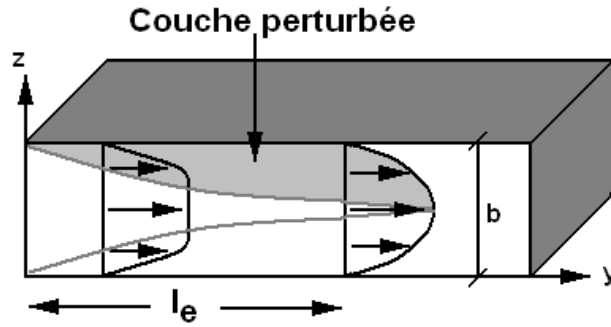
La constante  $f^*$  est un facteur dépendant du rapport d'aspect  $R$  et atteint la valeur 1 quand  $R$  est infini, mais dans notre cas, cette constante géométrique  $f^*$  est obtenue numériquement à partir de la série suivante [86] :

$$f^*(R) = \left[ \left( 1 + \frac{1}{R} \right)^2 \left( 1 - \frac{192}{\pi^5 R} \sum_{i=1,3,5}^{\infty} \frac{\tanh(\pi i R / 2)}{i^5} \right) \right]^{-1} \quad (3.49)$$

Les équations (3.44) et (3.48) seront utilisées par la suite pour calculer le gradient de vitesse moyen et maximal dans la cellule. Cependant, dans notre cas cette correction apporte une différence faible de 4% entre le  $\dot{\gamma}_w$  « idéal » et le  $\dot{\gamma}_w$  avec des parois a distance finie.

### Longueur d'entrée

Une précaution qui doit être prise en compte, concerne le calcul de la longueur d'entrée ( $l_e$ ) qui représente la distance parcourue par un fluide depuis l'entrée de la cellule pour atteindre un profil stationnaire [5]. Toutes les observations doivent être effectuées au-delà de cette longueur d'entrée qui est représentée dans la Figure 62.



**Figure 62 :** La longueur d'entrée  $l_e$  est située dans l'endroit où la couche perturbée par les effets d'entrée atteint la totalité de l'épaisseur  $b$  du canal

Quand le fluide pénètre dans la cellule, la couche de fluide « perturbée » augmente au fur et à mesure que le fluide s'écoule dans la géométrie de sorte qu'on retrouve un profil de vitesse complètement développé à une certaine distance à partir de l'entrée. Le gradient de vitesse est atténué par la diffusion visqueuse [5] en même temps que l'épaisseur de cette couche « perturbée » augmente selon :

$$\delta = \sqrt{\frac{\eta t}{\rho}} \quad (3.50)$$

Le temps caractéristique peut être calculé si l'on suppose que juste au delà de la couche perturbée, le fluide s'écoule à une vitesse  $v$  ; ainsi, sur une distance  $x$  à partir de l'entrée, l'équation (3.50) devient :

$$\delta_{(x)} = \sqrt{\frac{\eta x}{\rho v}} \quad (3.51)$$

La longueur d'entrée est finalement atteinte quand la perturbation est constante sur toute l'épaisseur, c'est-à-dire quand les deux couches limites se joignent et  $\delta_{(x)} = b/2$  tel que  $x = l_e$  :

$$l_e = \sqrt{\text{Re.}} \frac{b}{2} \quad (3.52)$$

Cette estimation est valable pour un fluide newtonien, mais nous permet une bonne estimation pour les expériences d'écoulement dans la cellule avec des fluides au comportement plus complexe.

### 3.2.2 Conception des géométries d'expérimentation:

La géométrie de Hele Shaw introduite dans le chapitre 1 a été choisie pour remplir une condition essentielle, à savoir le besoin d'un système simple où nous pouvons suivre le déplacement d'un fluide par un autre fluide. Les caractéristiques spécifiques considérées dans un premier temps ont répondu aux besoins particuliers tels que la visualisation et les conditions d'écoulement prévues ; cependant, en raison des difficultés apparues au cours des expériences, le montage initial a évolué.

Nous avons choisi le verre comme matériau pour fabriquer la cellule du fait de ses propriétés optiques, car la visualisation est simple – avec une caméra CCD et une source de lumière conventionnelle – et aussi du fait de ses propriétés physiques et chimiques ; le verre est en effet résistant aux formulations développées, doté d'une surface mouillable aux produits aqueux – qui peut facilement être traitée pour devenir mouillable à l'huile si besoin est –. Il est par ailleurs facile à nettoyer et ses propriétés interfaciales sont ainsi reproductibles.

La dimension critique que nous avons imposée est le rapport d'aspect  $R$  de la cellule – établi à  $R=10$  – qui nous permet de nous maintenir dans un cas où nous pouvons considérer une cellule avec des parois finies, mais dont le gradient de vitesse est considérablement plus grand dans l'épaisseur que dans la largeur de la cellule.

#### 3.2.2.a Cellule principale :

Le premier prototype de la cellule, fabriqué dans l'atelier de l'IFPEN en collant 4 plaques de verre, est pourvu de connections cylindriques entrée-sortie d'un diamètre de 2 mm facilement adaptables aux tuyaux qui introduisent les fluides. Les dimensions de la cellule sont les suivantes :  $L=400$  mm x  $W=20$  mm x  $b=2$  mm, ce qui donne  $R = 10$ . La longueur

L choisie est telle que pour les débits et les pressions imposés la longueur d'entrée est petite par rapport à  $L$ .

Dans ce premier prototype (Figure 63 à gauche), nous nous sommes assurés que la colle utilisée ne soit pas en contact avec les fluides de façon de ne pas modifier les conditions de mouillage. Cependant, avec le choix d'une cellule scellée, le nettoyage s'est avéré être une difficulté majeure, cela nous a amenée à concevoir des améliorations.



**Figure 63 :** Évolution de la cellule d'expérimentation. De gauche à droite : premier prototype conçu complètement en verre, complètement fermé, ensuite cellule en verre démontable et finalement cellule démontable en verre insérée dans une armature d'acier inoxydable.

Une deuxième cellule démontable (Figure 63 au centre) avec des dimensions internes identiques a été conçue à la suite des difficultés évoquées pour nettoyer le premier prototype. Les connexions pour le remplissage ont été déplacées pour faciliter un éventuel écoulement horizontal. Cette cellule s'est avérée efficace pour de faibles débits. Néanmoins, pour des débits élevés et pour des fluides visqueux, elle n'est pas utilisable car des fuites se produisent. Par ailleurs, sa fragilité la rend difficile à manier.

Un dernier modèle a été conçu avec une armature plus robuste (Figure 63 a droite), en acier inoxydable, comprenant des sections interchangeables en aluminium anodisé afin de faciliter l'intégration des modifications de géométrie (restrictions) ; les parois frontales restent en verre pour la visualisation. L'introduction de parois en aluminium anodisé, qui est « mouillé » par les fluides, n'introduit pas de perturbations dans le système : l'interface initiale au repos semble la même qu'on trouve avec le premier prototype.

### 3.2.2.b Restrictions :

Dans le dernier modèle de cellule, on a introduit deux types de restrictions : contraction puis expansion abrupte avec des canaux rectangulaires de tailles différentes, et expansion graduelle formée d'un canal de largeur variant selon une hyperbole. Un résumé des caractéristiques des restrictions réalisées est présenté dans le Tableau 10.

Restriction	RC1	RC2	RC3	RC4	RH1	RH2
Type	Rectangle	Rectangle	Rectangle	Rectangle	Hyperbole	Hyperbole
Relation Restriction/Canal Principal	1/3	1/3	1/4	1/4	1/3	1/4
Longueur de la restriction (cm)	2	4	2	4	4	4

**Tableau 10 :** Caractéristiques géométriques des restrictions pour la cellule de Hele Shaw

Dans la Figure 64 nous pouvons voir certaines de ces restrictions. Finalement dans la cadre de ce travail nous n'avons pas réalisé des expériences qu'avec les géométries RC2 et RH1.



**Figure 64 :** Restrictions intégrées dans la cellule de Hele Shaw (Expansion-contraction brusque et graduelle). De haut en bas : RH1, RH2, RC2 et RC1

### 3.2.2.c Microfluidique

Ces géométries, ou microsystemes ont été construits en PDMS (PolydiméthylSiloxane), élastomère transparent selon une technique de prototypage rapide bien maîtrisée au laboratoire de microfluidique de l'IFPEN. Cette technique permet de contrôler des écoulements avec un confinement des fluides à l'échelle de la dizaine de micromètres.

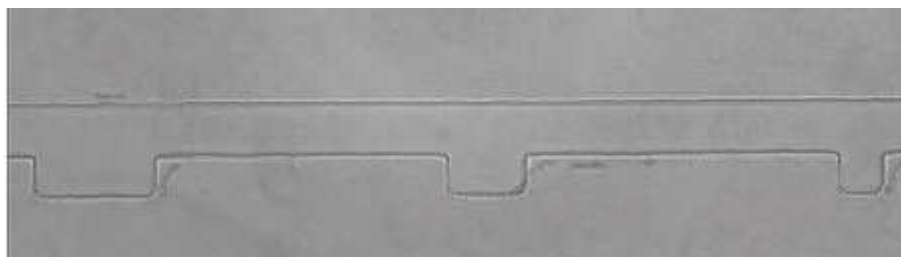
Pour fabriquer de tels microsystemes, nous pouvons distinguer trois étapes que nous reprenons rapidement ci-dessous. Pour plus d'informations sur les bases de cette microfabrication, on pourra consulter [87].

Une première étape consiste en le dessin assisté par logiciel des canaux du microsysteme pour la réalisation d'une impression opaque aux UV sur film plastique transparent. Les motifs des canaux apparaissent en "à plat" en transparence sur le film imprimé. Ce dernier constitue le "masque" en deux dimensions utilisé dans la deuxième étape dans un procédé de photogravure, ou photolithographie permettant de passer à un moule en trois dimensions avec des structures d'épaisseur uniforme. Il s'agit ici d'employer une résine photosensible (SU8) dont on dépose une couche d'épaisseur uniforme contrôlée sur un wafer de silicium (substrat parfaitement lisse et plat) et ce grâce à un procédé de spin-coating (ou "dépôt à la tournette"). Le dépôt de résine est exposé aux UV au travers du masque et à la suite de chauffages et d'un traitement de dissolution dans un solvant, seule la résine exposée et réticulée persiste sur le wafer. Le moule présentant les motifs des canaux en relief est employé dans la dernière étape pour imprimer le PDMS. Le PDMS liquide mélangé avec une part d'agent réticulant est versé sur le moule ; après réticulation de celui-ci par chauffage, on peut le peler de son support dont il a pris l'empreinte.

Le microsysteme est achevé en poinçonnant des trous dans le morceau de PDMS imprimé pour l'entrée et la sortie des fluides et finalement les canaux sont achevés en y accolant une surface plane. La fermeture est ici faite par mise au contact avec une autre surface de PDMS partiellement réticulée ; une bonne adhésion est obtenue à la fin de la réticulation.

Un détail du microsysteme réalisé est présenté dans la Figure 65. Les dimensions de la zone d'écoulement d'intérêt sont les suivantes : largeur du canal principal 100  $\mu\text{m}$ , longueur totale du canal 20000  $\mu\text{m}$ , épaisseur du canal 100  $\mu\text{m}$  avec trois "pores" de longueurs 200  $\mu\text{m}$ , 100  $\mu\text{m}$  et 50  $\mu\text{m}$  respectivement (et de largeur globale constatée égale à 175  $\mu\text{m}$ ).



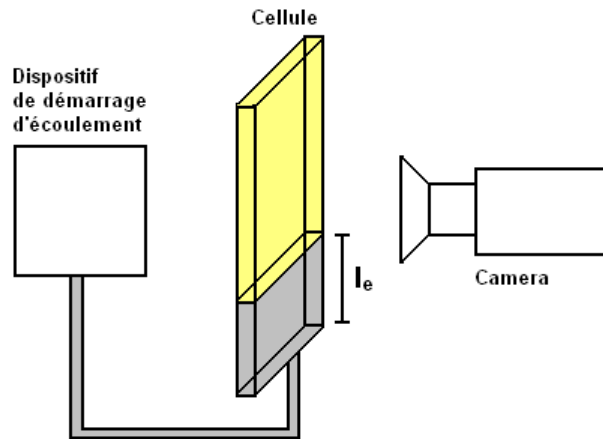


**Figure 65** : Détail, observé sous microscope optique du microsystème présentant trois "pores" sur le canal d'écoulement. La largeur du canal principal est de 100  $\mu\text{m}$ .

### 3.2.3 Mise en œuvre de l'écoulement

Le dispositif expérimental (cf. Figure 66) comprend trois sections. La première est le dispositif qui induit l'écoulement du fluide qui circulera dans la cellule. Puis, nous avons la cellule proprement dite, dans laquelle un fluide déplace un autre fluide moins visqueux contenu auparavant dans la cellule selon une direction d'écoulement principale ascendante. Nous trouvons enfin le dispositif d'acquisition des images – dans notre cas, une caméra CDD – qui nous permet d'étudier les caractéristiques de l'écoulement.

Comme l'objectif des expériences est de voir si la viscoélasticité modifie l'écoulement des deux fluides dans la cellule, dans chaque cas nous avons réalisé une comparaison entre un fluide déplaçant newtonien et un fluide déplaçant viscoélastique de viscosité analogue. L'évolution de l'interface entre les deux fluides est alors filmée grâce à une caméra dont la vitesse d'acquisition maximale est de 50 images/seconde.



**Figure 66 :** Schéma de mise en place des expériences d'écoulement.

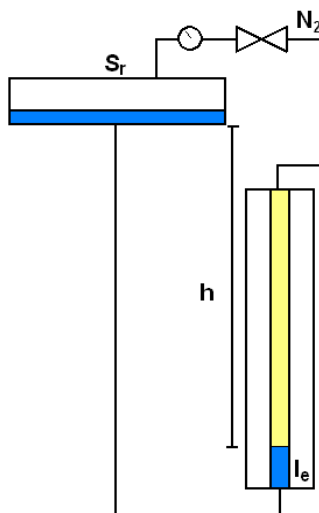
Le « fluide déplaçant » est mis en mouvement soit avec un gradient de pression imposé, soit avec un débit imposé.

Le « fluide déplacé » est une huile silicone newtonienne avec deux viscosités possibles ( $\eta = 100 \text{ mPa.s}$  et  $\eta = 5 \text{ mPa.s}$ ) choisies selon la viscosité du fluide déplaçant.

### 3.2.3.a Écoulement à gradient de pression imposé :

La conception initiale de la cellule prévoyait une alimentation à pression imposée. Deux procédures ont été mises en place pour obtenir deux gammes de chutes de pression, la première entre 0,01 et 0,05 bar et la deuxième entre 0,1 et 1 bar (Figure 67).

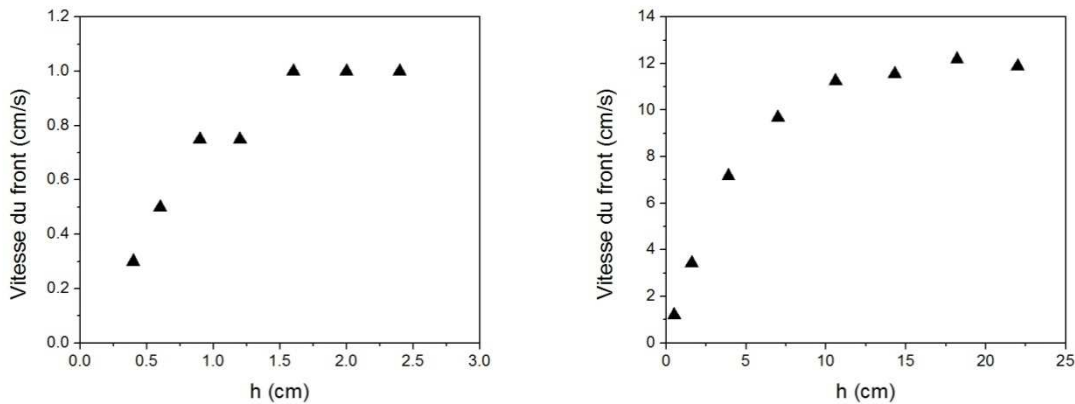
- Le gradient de pression faible est obtenu en exploitant le poids de la colonne du liquide ; nous avons mis en place ce gradient avec un réservoir de grande surface ( $S_r$ ) pour assurer un gradient de pression constant dans la cellule tel que  $S_r \gg Wb$ . La distance  $h$  est ajustée pour obtenir la chute de pression désirée (comme une fonction de la colonne hydrostatique) et la longueur d'entrée  $l_e$  est estimée en fonction d'une vitesse moyenne caractéristique de l'écoulement. Nous avons choisi de calculer une vitesse à partir du déplacement de l'interface entre le fluide aqueux et l'huile, désignée  $v_f$ , vitesse du front de l'interface, car le front en question, sans représenter directement le champ de vitesse dans l'un ou l'autre des fluides, peut au moins nous apporter des informations sur la stationnarité de l'écoulement.



**Figure 67 :** Schéma du dispositif de démarrage de l'écoulement en régime de pression imposé (par le poids d'une colonne de liquide de hauteur  $h$  ou par une ligne d'azote)

- Pour des gradients de pression plus importants, nous nous sommes servis d'une ligne d'azote connectée au réservoir pour induire des gradients de pression entre 0,1 bar et 1 bar mesurés avec un manomètre.

Le principal avantage d'une telle procédure est la facilité de mise en œuvre. En revanche, du fait de la variation de hauteur de l'interface dans la cellule et des volumes respectifs des deux phases présentes au cours du temps, l'écoulement n'est pas stationnaire et donc son analyse est particulièrement compliquée. Ainsi, dans la Figure 68, la vitesse du front ( $v_f$ ) est présentée pour plusieurs systèmes à pression imposée en fonction de  $h$ , qui est la distance mesurée à partir de l'interface plate initiale.



**Figure 68 :** Écoulement dans la cellule à pression imposée. La vitesse du front est représentée en fonction de l'hauteur dans la cellule. À gauche  $P = \text{bar } 0,1$ , à droite  $P = 0,64$ .

Nous pouvons constater que la distance nécessaire pour atteindre une valeur de  $v_f$  constante augmente avec la pression imposée est atteint des valeurs prohibitives aux pressions élevées (plus de la moitié de la cellule). De cette analyse, nous pouvons cependant établir une relation entre la pression imposée et  $v_f$  en état stationnaire, résumée dans le Tableau 11 :

Méthode	Pression/Hauteur	$h^*$ (cm)	$V_f$ (cm/s)
Poids Colonne	20 cm	2	1
Poids Colonne	50 cm	15	8
Azote	0,64 bar	22	12
Azote	0,5 bar	16	8
Azote	0,1 bar	5	1

**Tableau 11 :** Hauteur approximative de stabilisation des écoulements dans la cellule à débit et pression imposée

### 3.2.3.b Écoulement à débit imposé :

Les expériences à débit constant ont été mises en place avec un pousse-seringue – de marque KD scientifique et de modèle KDS220 – de 10 canaux qui permet d'imposer des débits maximaux de 12 ml/s, équivalant à une vitesse moyenne de 30 cm/s dans la cellule, avec des seringues de 50 ml et de 100 ml. (Figure 69). Dans la cellule, le gradient de vitesse peut atteindre une large gamme de valeurs (entre  $1\text{s}^{-1}$  et plusieurs centaines)

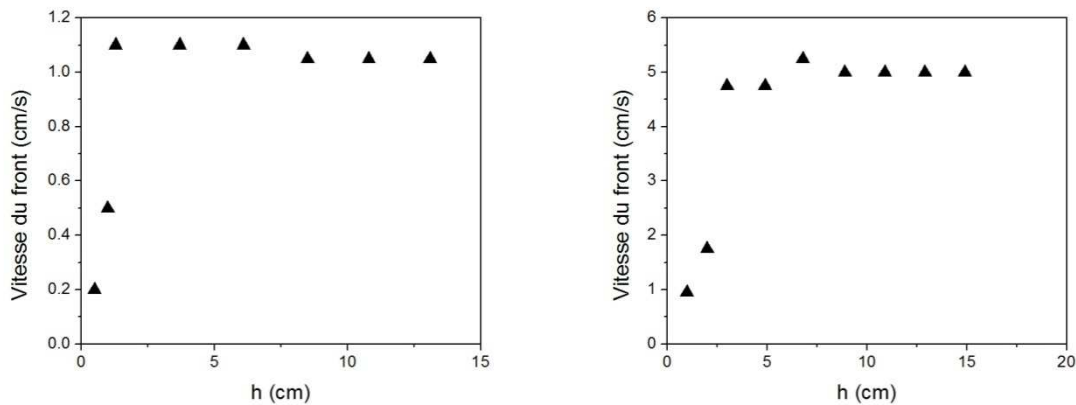


**Figure 69 :** Pousse - Seringue KDS220

Un avantage primordial de ce dispositif est qu'il permet une stabilisation très rapide de la vitesse du front par rapport aux expériences à pression imposée, même pour des vitesses élevées. Finalement on peut estimer grossièrement la vitesse du front imposée à partir de la relation suivante :

$$v_{fi} = \frac{Q}{Wb} \quad (3.53)$$

Nous avons constaté, dans une large gamme de débits imposés, que le  $v_f$  calculé correspond à la  $v_{fi}$  (ce qui montre que notre dispositif est fiable) et que la  $v_{fi}$  est atteinte rapidement dans la cellule (Figure 70). Cela permet effectuer des expériences de déplacement dans une large gamme des gradients de vitesse. Une étude plus détaillée de l'évolution de la vitesse de l'interface dans le régime transitoire est proposé dans le chapitre 4.



**Figure 70 :** Écoulement dans la cellule à débit imposé. Vitesse du front en fonction de la hauteur dans la cellule pour deux débits imposés, à gauche  $Q=0,4 \text{ cm}^3/\text{s}$  et à droite  $Q= 2 \text{ cm}^3/\text{s}$ .

Dans le Tableau 12 on indique le gradient de vitesse moyen et le gradient de vitesse à la paroi pour les débits imposés avec la pousse-seringue:

Débit (cm <sup>3</sup> /s)	$v_f$ (cm/s)	Seringues	$\bar{\dot{\gamma}}$ (s <sup>-1</sup> )	$\dot{\gamma}_w$ (s <sup>-1</sup> )
0,04	0,1	1x50ml	1,5	2,88
0,2	0,5	1x50ml	7,5	14,4
0,4	1	1x50ml	15	28,8
1,2	3	1x50ml	45	86,4
2	5	1x100ml	75	144
3,2	8	2x100ml	120	230,4
4	10	2x100ml	150	288
6	15	4x100ml	225	432
8	20	4x100ml	300	576
12	30	6x100ml	450	864

**Tableau 12** : Gradients de vitesse moyen et maximum pour les différents débits imposés

### 3.2.3.c Expériences de déplacement :

Les expériences préliminaires nous fournissent un certain nombre d'informations :

- A pression imposée ou à débit imposé, le déplacement pour les différents types de fluides atteint une vitesse  $v_f$  constante au bout d'une certaine longueur dans la cellule. Cependant, cette longueur est (beaucoup) plus longue pour les expériences à pression imposée.

- La forme du profil de l'interface aqueux/huile est différente selon la nature du fluide déplaçant et selon le débit/pression imposé.

- Le déplacement dans la cellule comporte deux phases : une première phase « transitoire » où la forme du profil de l'interface varie, suivie d'une deuxième phase « stationnaire » où la forme du profil reste invariable depuis une longueur  $h_s$ . La valeur de  $h_s$  dépend essentiellement de la pression/débit imposée et légèrement du fluide déplaçant.

À partir de ces remarques, nous avons imposé le débit pour la mise en œuvre de l'écoulement: la forme de l'interface fluide/huile sera considérée comme le critère premier de comparaison, car il s'agit d'un paramètre facile à mesurer à partir des enregistrements qui varie avec le fluide et avec la  $v_f$  de l'expérience.

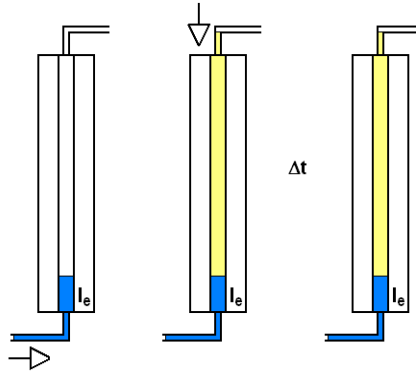
Cependant, pour mesurer une forme d'interface caractéristique, il faut d'abord établir la longueur à partir de laquelle l'écoulement est stationnaire. Pour cela nous avons choisi deux endroits différents de la cellule pour placer des fenêtres d'observation car l'enregistrement des profils dans une longueur plus étendue de la cellule (entre 10 et 20 cm) ne permet pas d'établir avec certitude la longueur de stabilisation  $h_s$ . De plus, la résolution des images ne permet pas de caractériser clairement la forme de l'interface.

Une première expérience permet d'enregistrer le démarrage pour un certain débit  $Q$  (fenêtre toujours placée à partir de l'interface initiale) et la longueur  $h_s$  est déterminée pour ces conditions. Ensuite, l'enregistrement de toutes les expériences pour obtenir les profils avec un débit  $Q$  est réalisé en plaçant la fenêtre d'observation au-delà de la longueur  $h_s$ .

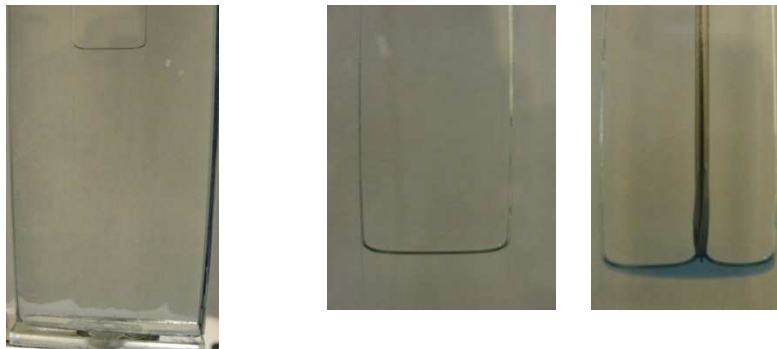
### 3.2.4 Description d'une expérience :

#### 3.2.4.a Remplissage des fluides :

Le fluide newtonien est chargé dans le dispositif de remplissage (réservoir connecté à la ligne d'azote ou au pousse-seringue selon le régime choisi). Ensuite, il est introduit depuis la partie inférieure de la cellule pour remplir un volume dont la hauteur correspond à une distance – à partir de l'entrée – égale ou supérieure à la « longueur entrée » (3.52). Cette distance  $l_e$ , définie pour un fluide newtonien est calculée pour toutes les formulations viscoélastiques en considérant sa viscosité  $\eta_0$ . Puis, l'huile est remplie depuis le dessous à l'aide d'une longue aiguille – pour minimiser les perturbations dans l'interface fluide viscoélastique/huile – jusqu'à remplir complètement la cellule et atteindre le point de vidange, de telle façon que le volume total des fluides, pendant l'expérience, soit maintenu constant. Le système doit observer un temps de stabilisation permettant de s'assurer – au départ du déplacement – que l'interface est en équilibre. (Figure 71 et Figure 72)



**Figure 71 :** Schéma de remplissage des fluides dans la cellule d'expérimentation.



**Figure 72 :** Détail du fluide déplaçant rempli jusqu'à la longueur d'entrée (gauche), détail de l'interface fluide viscoélastique-air (centre) et détail de l'interface pendant l'injection d'huile colorée (droite)

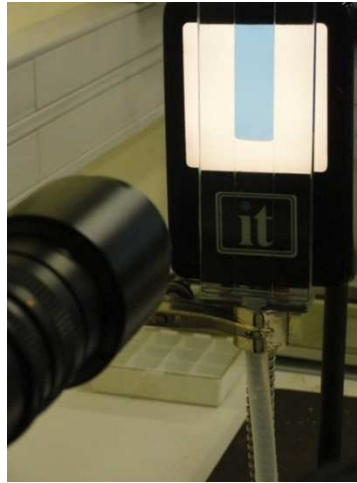
### 3.2.4.b Réglage d'acquisition des images et lancement de l'expérience :

La fenêtre d'observation et la vitesse d'acquisition sont ajustées en fonction de la vitesse du fluide déplaçant. Cette fenêtre peut être placée dans deux zones différentes, soit au début de l'interface en repos (pour suivre le démarrage et le développement du profil) ou à une distance éloignée de l'interface initiale pour enregistrer un profil en état stationnaire. L'éclairage est ensuite ajusté dans la fenêtre d'acquisition avec une lampe de lumière blanche de sorte que le contraste fluide viscoélastique/huile (coloré) permette aisément d'établir la position de l'interface.

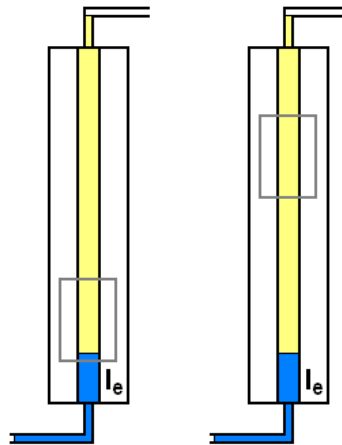
L'enregistrement commence et l'écoulement est induit par la source choisie (débit imposé). Des images successives sont prises à intervalles compris entre 20 ms et 500 ms selon la  $v_f$  attendue de l'expérience (Figure 73). Si la fenêtre d'observation est en bas, le



développement de la forme de l'interface est enregistré pendant la partie transitoire de l'écoulement. Au contraire, si la fenêtre est déplacée vers le haut (placée à une distance supérieure à la hauteur de stabilisation de chaque système, ce qui sera abordé en détail par la suite), nous obtenons un profil unique et caractéristique de la forme de l'interface. (Figure 74)



**Figure 73 :** Caméra, cellule et source de lumière



**Figure 74 :** Schéma de la localisation des fenêtres d'observation pendant l'expérience

### ***Analyse des données :***

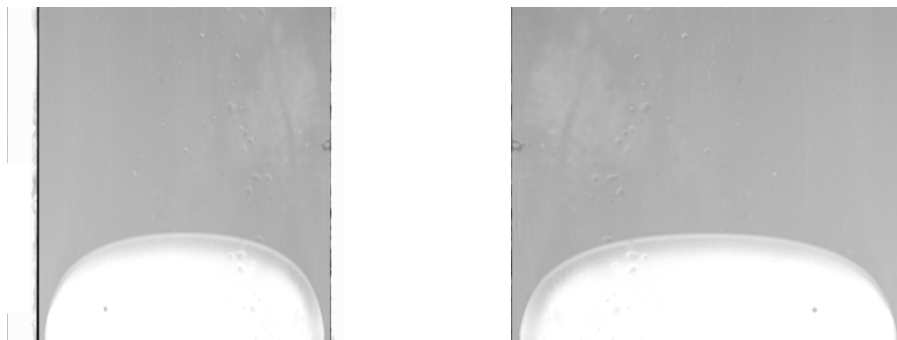
Le critère de comparaison étant le contour de l'interface formée respectivement entre le fluide et l'huile, il faut – dès que les images sont prises – choisir un certain nombre d'entre elles pour les convertir en données analysables en coordonnées cartésiennes. Nous avons choisi de développer divers programmes sous Matlab® afin de convertir les données.

Si la fenêtre d'observation est placée pour enregistrer le démarrage, entre 10 et 20 images sont choisies à intervalles de temps réguliers pour couvrir la totalité de la fenêtre d'observation et déterminer  $h_s$ . Au contraire, si la fenêtre d'observation est placée au-delà de  $h_s$  pour enregistrer le profil en état stationnaire, entre 4 et 8 images choisies à intervalles réguliers de temps sont suffisantes pour couvrir la totalité de la fenêtre d'observation et obtenir le profil caractéristique d'une expérience.

L'analyse de ces données permet de calculer la symétrie des profils obtenus pour valider les expériences et calculer l'incertitude de mesure, ce qui assure la répétabilité avant l'analyse proprement dite.

### ***Programme 1: Conversion d'images en données :***

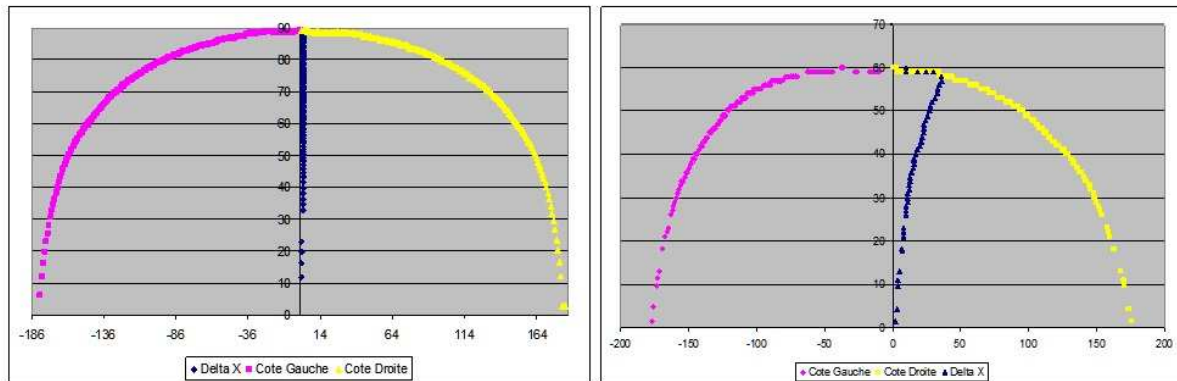
La fenêtre d'observation (Figure 75) est découpée pour obtenir des images de dimensions  $\alpha \times \beta$  pixels où  $\alpha$  est équivalent à 2 cm et correspond à la largeur de la cellule, et  $\beta$  est équivalent à la longueur de la fenêtre d'observation. Le contraste entre les deux phases produit une courbe que le logiciel va différencier du reste de l'image ; une moyenne est calculée par pixel dans la direction x pour obtenir une courbe en coordonnées cartésiennes de chaque image.



**Figure 75 :** A gauche : Image originale dans la fenêtre d'observation : 768x572 pixels. A droite : Fenêtre découpée pour le traitement des images : 668x572 pixels,  $x = 2\text{cm}$  ;  $y = 1,75\text{ cm}$ .

### ***Programme 2 : Vérification de symétrie***

Une fois que les profils sont enregistrés, une vérification de symétrie (Figure 76 à gauche) est réalisée. L'axe de symétrie est pris à la moitié de la largeur ( $x = 1\text{ cm}$ ) et un seuil de tolérance est établi ; si l'expérience le dépasse, elle est rejetée (Figure 76 à droite).

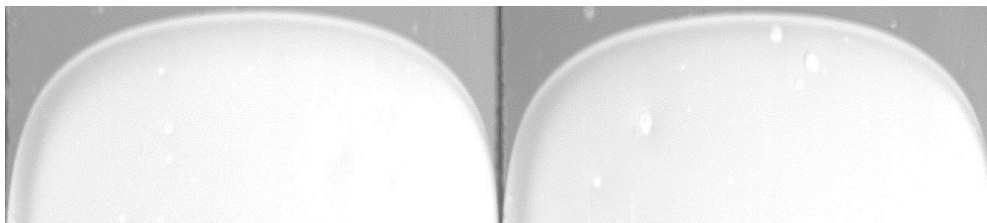


**Figure 76** : A gauche : Image symétrique. A droite : Image asymétrique.

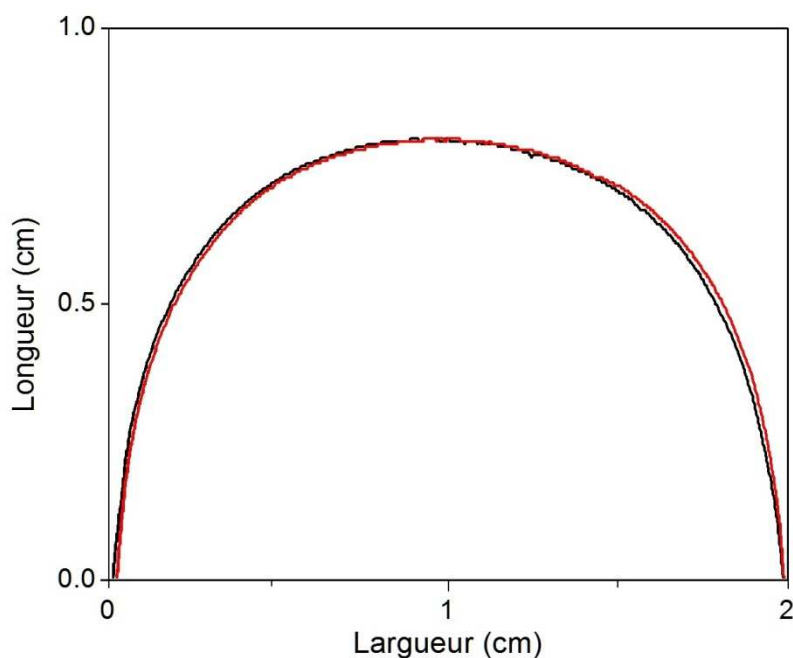
### ***Programme 3 : Calcul de l'incertitude de mesure***

Pour une expérience de démarrage, les profils à intervalles de temps égaux pour deux essais sont moyennés et l'écart moyen en fonction de  $x$  est calculé. Un seuil de tolérance est établi et l'expérience est validée si l'incertitude est au dessous du seuil dans toute la largeur.

Pour une expérience d'écoulement stationnaire, un groupe de 5 images par expérience avec intervalles de temps égaux est sélectionné et le profil moyen de l'interface dans toute la largeur est calculé. Ensuite, une deuxième expérience est analysée de façon analogue pour obtenir deux profils moyens. Un seuil de tolérance est utilisé (2% de la hauteur d'analyse) et l'expérience est validée si l'écart est en dessous de ce seuil sur toute la largeur. Par exemple la Figure 77 montre deux images obtenues à partir de deux expériences différentes dans des conditions identiques (fluide et vitesse). Les profils mesurés sont montrés dans la Figure 77. Par ailleurs, avec la caméra employée, l'incertitude associée à l'intervalle de temps entre deux images est d'une milliseconde. L'incertitude associée à la mesure des profils d'interface à partir des images est de 1 pixel, ce qui représente approximativement  $1/600$  de l'échelle de la fenêtre d'observation.

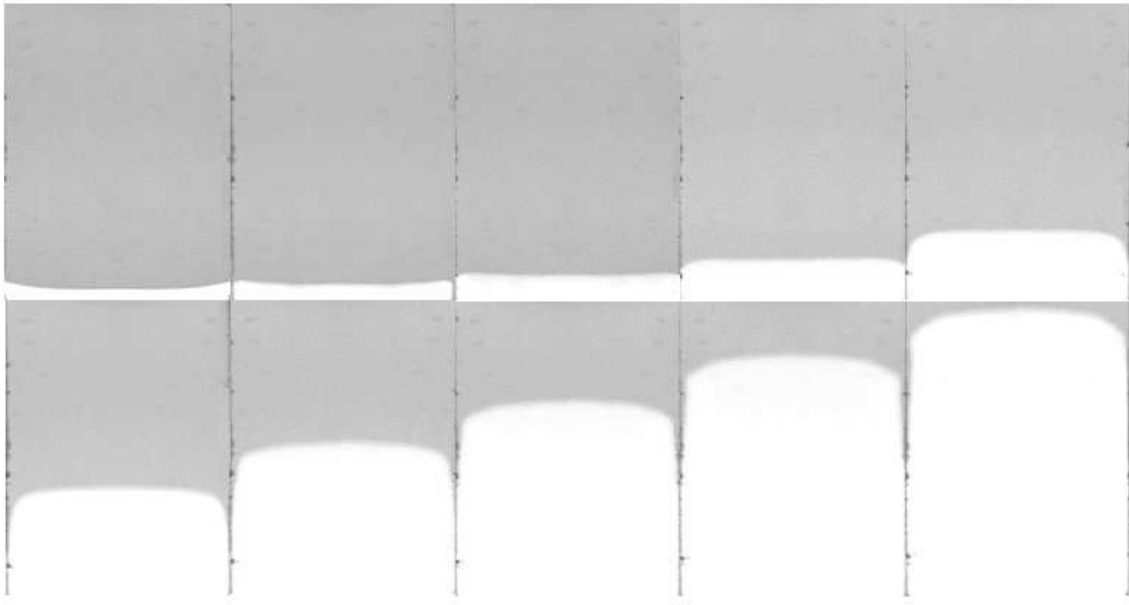


**Figure 77 :** Images de deux expériences indépendantes de déplacement avec du Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s) déplaçant de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) à  $1,2 \text{ cm}^3/\text{s}$ . La largeur est de 2 cm et la hauteur de 0,75cm.

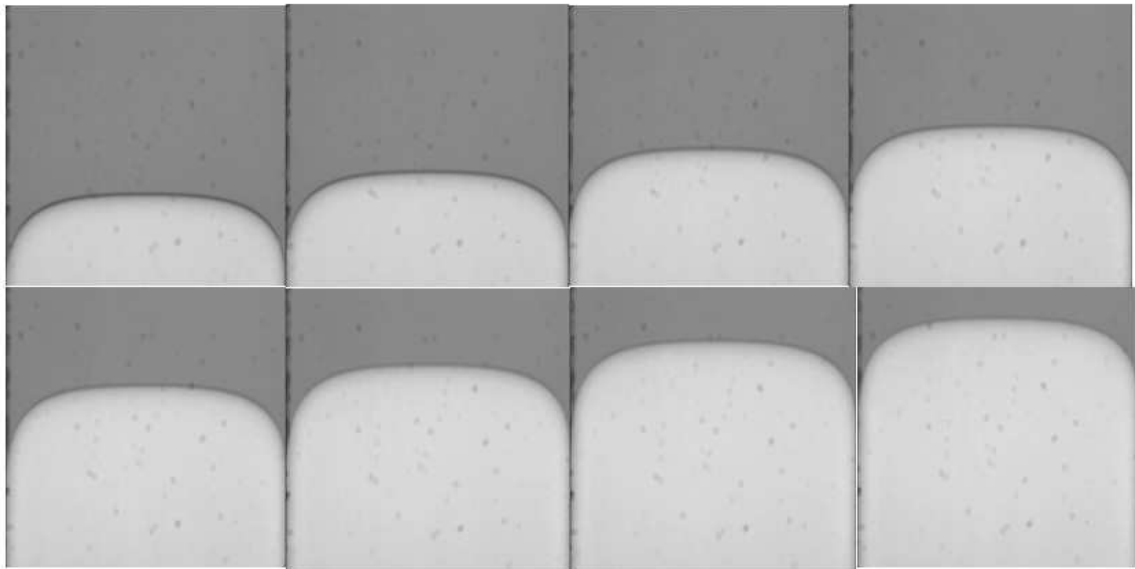


**Figure 78 :** Comparaison des profils mesurés à partir des images de la figure 76.

Intéressons nous ensuite à deux mesures typiques, la première (Figure 79) correspond au démarrage d'un déplacement à un débit imposé de  $4 \text{ cm}^3/\text{s}$  qui représente une vitesse moyenne de  $10 \text{ cm/s}$  dans la cellule avec des intervalles de temps de 100 ms. Dans la première image, nous observons l'angle qui se forme entre les deux phases, associé au mouillage du fluide viscoélastique sur le verre (hydrophile). Une autre série des images (Figure 80) montrent l'aspect de l'écoulement loin de l'entrée de la cellule.



**Figure 79 :** Expérience de déplacement depuis le démarrage. Formulation PAM-6000 ( $\eta = 0,13 \text{ Pa.s}$ ) déplaçant de l'huile de silicone ( $\eta = 0,1 \text{ Pa.s}$ ) à  $4 \text{ cm}^3/\text{s}$



**Figure 80 :** Expérience de déplacement en régime stationnaire. La largeur est de 2 cm et la hauteur de 5cm pour chaque image. Canadou ( $\eta=0,16 \text{ Pa.s}$ ) déplaçant de l'huile de silicone ( $\eta=0,1 \text{ Pa.s}$ ) à  $2 \text{ cm}^3/\text{s}$ .



# **Chapitre 4 : Résultats expérimentaux**

---

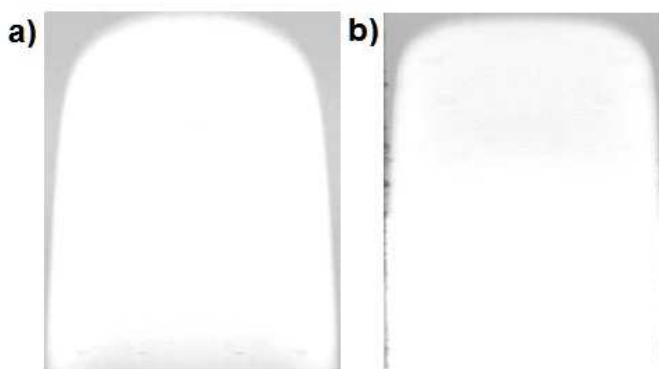




## 4.1 Écoulement dans la cellule principale

Comme nous l'avons suggéré lors des premières observations concernant les écoulements confinés (voir Chapitre 3), la forme de l'interface fluide aqueux/huile (Figure 81), représente une mesure du niveau de « pénétration » du fluide déplaçant. Dans ce chapitre nous étudions l'impact de différentes propriétés rhéologiques sur la forme de cette interface. L'objectif est évidemment d'établir si éventuellement les contraintes normales ou une autre caractéristique liée à la viscoélasticité du fluide sont à l'origine d'une meilleure ou moins bonne pénétration, ce qui suggérerait une explication à la diminution de la saturation d'huile dans les opérations de *polymer flooding* mentionnées dans le chapitre 1.

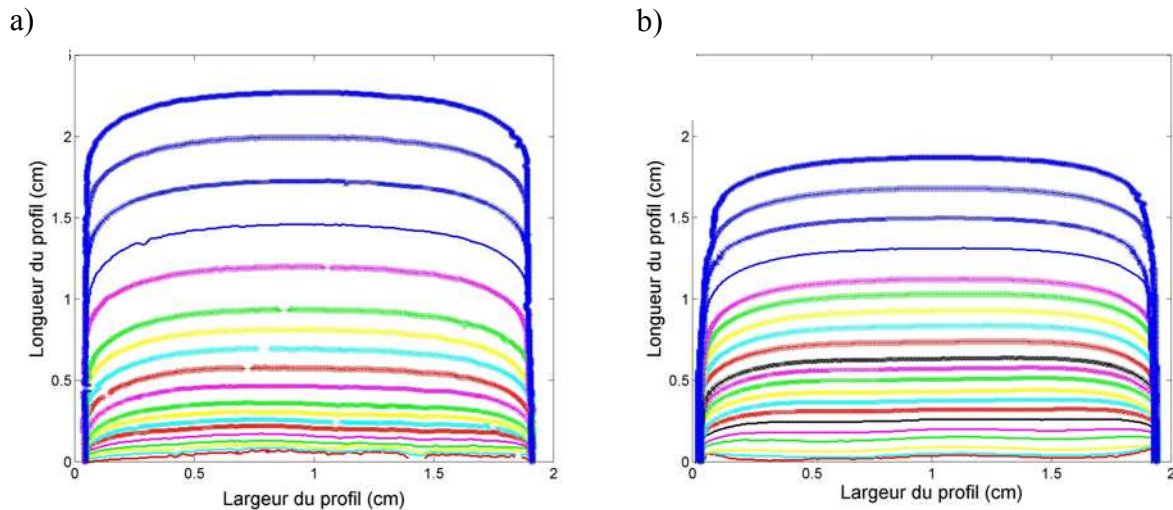
Dans ce chapitre nous étudions d'abord en détail l'écoulement de différents types de matériau dans une cellule simple. Nous montrons que les profils de l'interface dépendent des propriétés rhéologiques de la phase déplaçante, et que les propriétés interfaciales ne jouent pas un rôle majeur dans la forme stationnaire. Nous nous intéressons ensuite à l'écoulement dans une restriction, et présenterons un essai d'écoulement à plus petite échelle, en microsysteme.



**Figure 81:** Différence de forme de l'interface lors des expériences de déplacement à  $Q = 2 \text{ cm}^3/\text{s}$  entre **a)** Canadou ( $\eta = 0,16 \text{ Pa.s}$ ) et **b)** PAM-6000 ( $\eta = 0,16 \text{ Pa.s}$ ). Le fluide déplacé est l'huile de silicone ( $\eta = 0,1 \text{ Pa.s}$ ).

### 4.1.1 Etablissement de la forme de l'interface

Il est d'abord essentiel de déterminer la distance nécessaire pour l'établissement d'une forme caractéristique de l'interface quand différentes formulations viscoélastiques ou un fluide newtonien déplacent l'huile silicone. La Figure 82 montre les différentes étapes de la déformation de l'interface. Initialement cette interface est à peu près droite (la forme dépend en fait des conditions de mise en place). Puis cette interface est déformée au fur et à mesure que le fluide déplaçant avance dans la cellule. Après un certain temps  $t_s$  et une distance  $h_s$  il semble que sa forme devient à peu près constante dans le plan  $xy$ . Dans la suite nous utilisons deux techniques différentes pour observer les variations de ce profil au cours de l'avancement. La première consiste à comparer la forme des profils pour obtenir la vitesse de l'interface à partir du point de l'interface située au milieu de la largeur, la seconde consiste à calculer la vitesse d'avancement de toute l'interface.



**Figure 82 :** Profils de l'interface au cours du temps à  $Q = 0,4 \text{ cm}^3/\text{s}$  pour deux fluides : **a)** Canadou ( $\eta = 0,16 \text{ Pa.s}$ ) et **b)** PAM-6000 ( $\eta = 0,26 \text{ Pa.s}$ ). Le fluide déplacé est l'huile de silicone ( $\eta = 0,1 \text{ Pa.s}$ ).

Une première approche consiste donc à observer globalement la vitesse de déplacement du front de l'interface au cours du temps en fonction du point de l'interface situé au milieu de la largeur. Pour cela, il suffit de calculer la vitesse de déplacement de ce point entre deux profils ( $v = \Delta y / \Delta t$ ). Si après un temps  $t_i$  et une position  $h_i$  les profils suivants se superposent au profil  $i$  et si la forme de l'interface ne bouge plus, on peut alors statuer que l'interface se déplace globalement à vitesse constante et nous considérons que

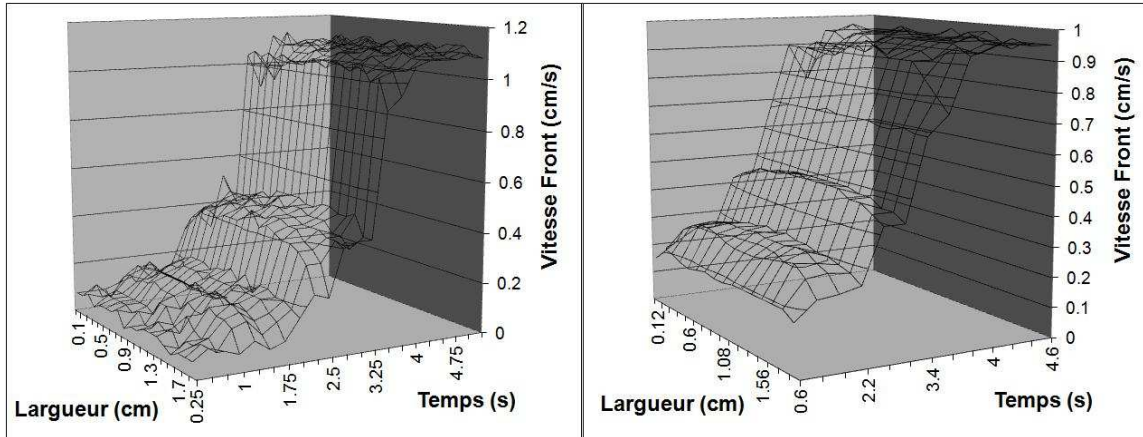
$t_s = t_i$  et  $h_s = h_i$ . En appliquant cette méthode (profils en bleu, dans la partie supérieure de la Figure 82) on obtient les valeurs ci-dessous (voir Tableau 13) pour le fluide newtonien et les deux formulations viscoélastiques. L'équilibre est atteint quelle que soit la nature du fluide déplaçant. Ceci nous permet donc de définir une vitesse de propagation du profil le long de la cellule. Dans la suite nous utiliserons cette valeur pour décrire la vitesse de l'écoulement considéré.

Fluide Déplaçant	Canadou		PAM-4000		PAM-6000	
	$v_{fi}=1$ cm/s	$v_{fi}=5$ cm/s	$v_{fi}=1$ cm/s	$v_{fi}=5$ cm/s	$v_{fi}=1$ cm/s	$v_{fi}=5$ cm/s
$t_s$ (s)	3.75	2	4.25	2.2	4.5	2.4
$h_s$ (cm)	1.3	2.6	1.25	2.9	1.2	3

**Tableau 13 :** Temps et hauteur de stabilisation dans la cellule pour différents fluides

Dans une deuxième approche, nous nous intéressons aux évolutions de la forme de toute l'interface au cours du temps. Une vitesse de propagation de l'interface ( $v_{yx_i}$ ) peut être calculée à partir de deux images consécutives. La vitesse de plusieurs points de l'interface est calculée le long de l'axe x avec l'équation suivante :

$$v_{yx_i} = \frac{h^*_{(i)} - h^*_{(i-1)}}{t^*_{(i)} - t^*_{(i-1)}} \quad \forall y = h^*; \quad 0cm < x < 2cm; \quad t_{xy} = \frac{t^*_{(i)} + t^*_{(i-1)}}{2} \quad (4.1)$$



**Figure 83 :** À gauche, vitesse de propagation de l'interface Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) à  $Q=0,4$  cm<sup>3</sup>/s. À droite, vitesse de propagation de l'interface PMA-6000 ( $\eta=0,26$  Pa.s)/huile silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) à  $Q=0,4$  cm<sup>3</sup>/s. Vitesse du front en fonction du temps et de la position sur la largeur de la cellule.

Nous constatons que la vitesse commence par augmenter rapidement puis se stabilise (plateaux de la Figure 83), fait que nous allons reprendre dans la discussion. En conséquence, nous considérons que la stabilisation est constatée sur toute la largeur de la cellule, car toute l'interface (et pas seulement le front de l'interface) se déplace à la même vitesse au-delà de la distance de stabilisation.

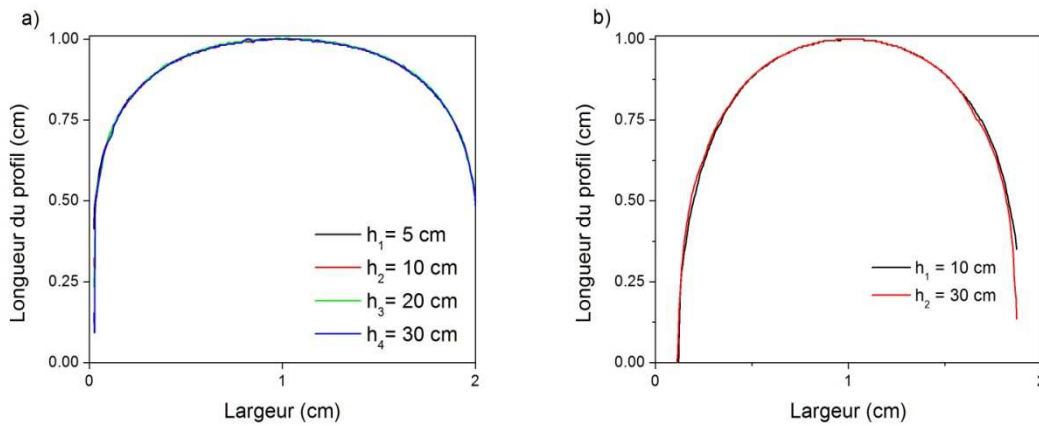
A faible débit  $h_s$  est essentiellement la même pour tous les systèmes. Cependant, les formulations élastiques se stabilisent à une distance plus grande par rapport au fluide newtonien quand le débit imposé est plus grand. C'est donc avec la formulation PAM-6000 que les distances de stabilisation sont les plus élevées. Les valeurs correspondantes en fonction de la vitesse sont montrées dans le Tableau 14. En pratique, en n'utilisant que les données de profils mesurés au-delà des distances observées pour ce fluide nous avons l'assurance d'être dans une zone stationnaire quel que soit le fluide (parmi ceux que nous avons utilisés).

$v_{fi}$ (cm/s)	$h_s$ (cm)
1	1,2
5	3
8	3,9
15	5,7
20	6,8

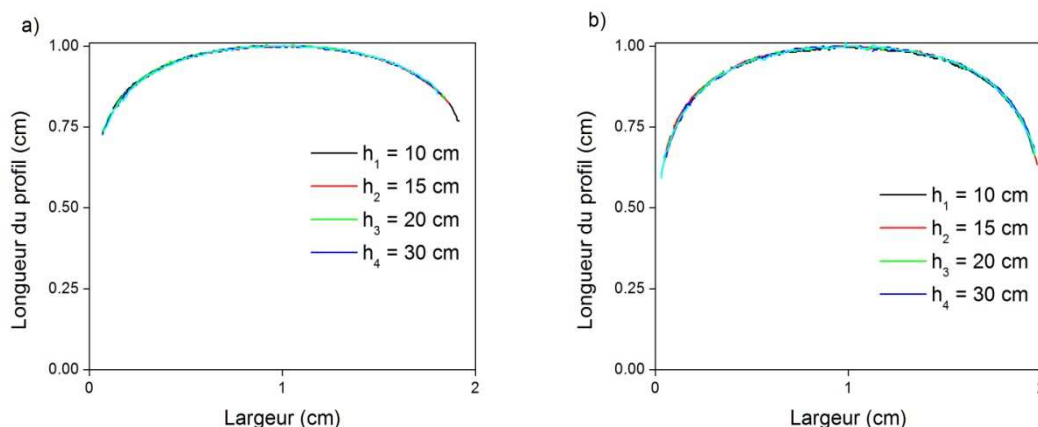
**Tableau 14 :** Hauteur de stabilisation pour la formulation PAM-6000 en fonction de la vitesse de front imposée.

Puisque dans la suite ce ne sont pas les vitesses que nous allons utiliser pour l'analyse des données mais les profils, il est intéressant de confirmer le résultat à partir des profils. Ceci permettra donc de vérifier que le profil constitué dans la partie inférieure de la cellule reste inchangé sur toute sa longueur, c'est-à-dire qu'il n'est pas perturbé par des effets produits à la sortie de la cellule ou simplement par le fait que la distribution des fluides dans la cellule change au cours de l'avancement du front puisque l'huile disparaît progressivement.

Plusieurs profils sont enregistrés dans une fenêtre d'observation placée au-delà de  $h_s$ . Ces profils d'interface, pris à différentes hauteurs dans la cellule, ont été déplacés, superposés et représentés dans la Figure 84 et Figure 85. Pour cela, nous avons utilisé comme référence le sommet de chaque profil et placé toutes les images dans une même figure dont la référence est ce point maximum.



**Figure 84 :** Superposition des images du profil de l'interface Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile Silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) prises à différentes hauteurs de la cellule : a)  $Q=0,4$  cm<sup>3</sup>/s b) et  $Q=2$  cm<sup>3</sup>/s.



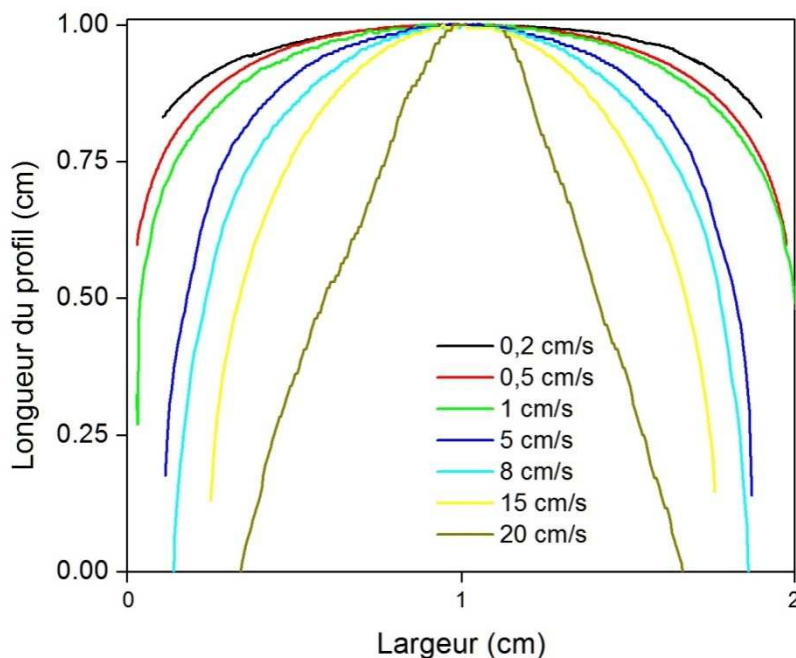
**Figure 85 :** Superposition des images du profil de l'interface PMA-6000/huile Silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) prises à différentes hauteurs de la cellule : **a)**  $Q=0,4$  cm<sup>3</sup>/s avec  $\eta=0,16$  Pa.s et à **b)**  $Q=2$  cm<sup>3</sup>/s avec  $\eta=0,16$  Pa.s.

Les résultats obtenus dans les deux cas « extrêmes » (fluide newtonien et PAM-6000) (voir Figure 84 et Figure 85) montrent que les profils observés au-delà de la distance  $h_s$  sont bien stationnaires le long de la cellule. Le même résultat est obtenu pour tous les autres fluides et toutes les vitesses. En revanche la forme du profil stationnaire dépend bien sûr du type de fluide et de la vitesse. Dans la suite nous utilisons ce profil stationnaire comme référence et discutons de ses variations en fonction de la vitesse et des propriétés physiques des deux fluides.

### 4.1.2 Influence de la vitesse

Examinons d'abord l'impact de la vitesse sur la forme du profil. Pour cela on peut s'intéresser aux caractéristiques observées dans le cas d'un fluide déplaçant newtonien, car les tendances globales sont générales, même si, comme on le verra, il y a des différences dans les évolutions en fonction des propriétés rhéologiques des fluides.

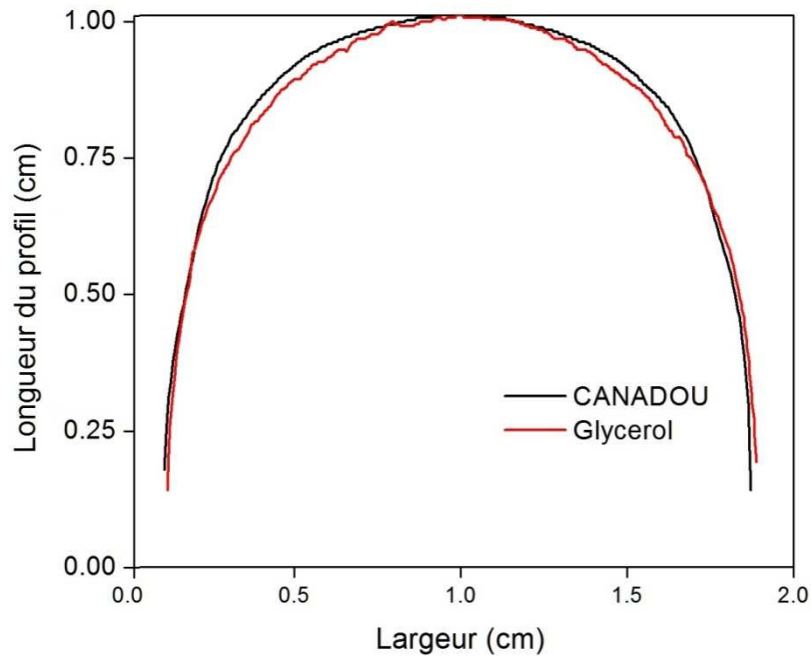
On constate (voir Figure 86) qu'à faible vitesse le profil est très plat, puis il s'arrondit progressivement et relativement fortement aux fortes vitesses. Cependant, au-delà d'une vitesse critique (autour de 20cm/s pour l'expérience de la Figure 86) le profil devient instable, sa forme n'est plus régulière et les mesures peu reproductibles.



**Figure 86 :** Profils de l'interface Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) entre 0,1 cm/s (noir) et 20 cm/s (doré).

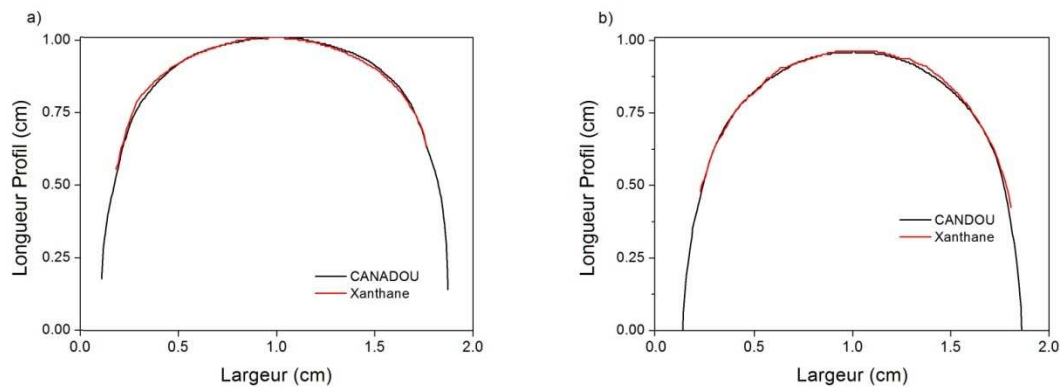
### 4.1.3 Impact de la viscosité des fluides

Comme la viscosité apparente des différents fluides viscoélastiques utilisés varie légèrement d'un fluide à un autre en dépit du fait que nous avons essayé de la fixer à une valeur donnée (légèrement supérieure à celle de l'huile déplacée) il est intéressant d'observer l'impact de la viscosité du fluide déplaçant sur la forme du profil. Pour cela nous nous plaçons d'abord dans le cas de fluides newtoniens. D'après les résultats de la Figure 86 on peut se focaliser simplement sur le profil à 5 cm/s qui est bien représentatif de la forme de l'interface entre deux tels fluides, puisqu'il correspond à un régime où l'interface est bien courbée, sans être encore affectée par l'instabilité aux fortes vitesses. On constate alors que multiplier la viscosité par 2 ne change pas la forme de cette interface (voir Figure 87).



**Figure 87 :** Comparaison des profils de l'interface entre Canadou ( $\eta = 0,16$  Pa.s) et Glycérol 85 % ( $\eta = 0,34$  Pa.s) à  $v_{fi} = 5$  cm/s. Le fluide déplacé est l'huile de silicone ( $\eta = 0,1$  Pa.s)

Comme une partie de nos fluides viscoélastiques présentent également des propriétés rhéofluidifiantes il est intéressant d'étudier l'impact de la rhéofluidification seule sur le profil de l'interface. Pour cela nous avons utilisé du Xanthane, fluide rhéofluidifiant mais aux propriétés viscoélastiques négligeables. Comme nous pouvons le constater sur la Figure 88, le fait d'avoir un fluide rhéofluidifiant déplaçant ne modifie pas la forme de l'interface. Dans chaque expérience la viscosité apparente du Xanthane a été calculée avec la loi de comportement obtenue dans la section 6.4.

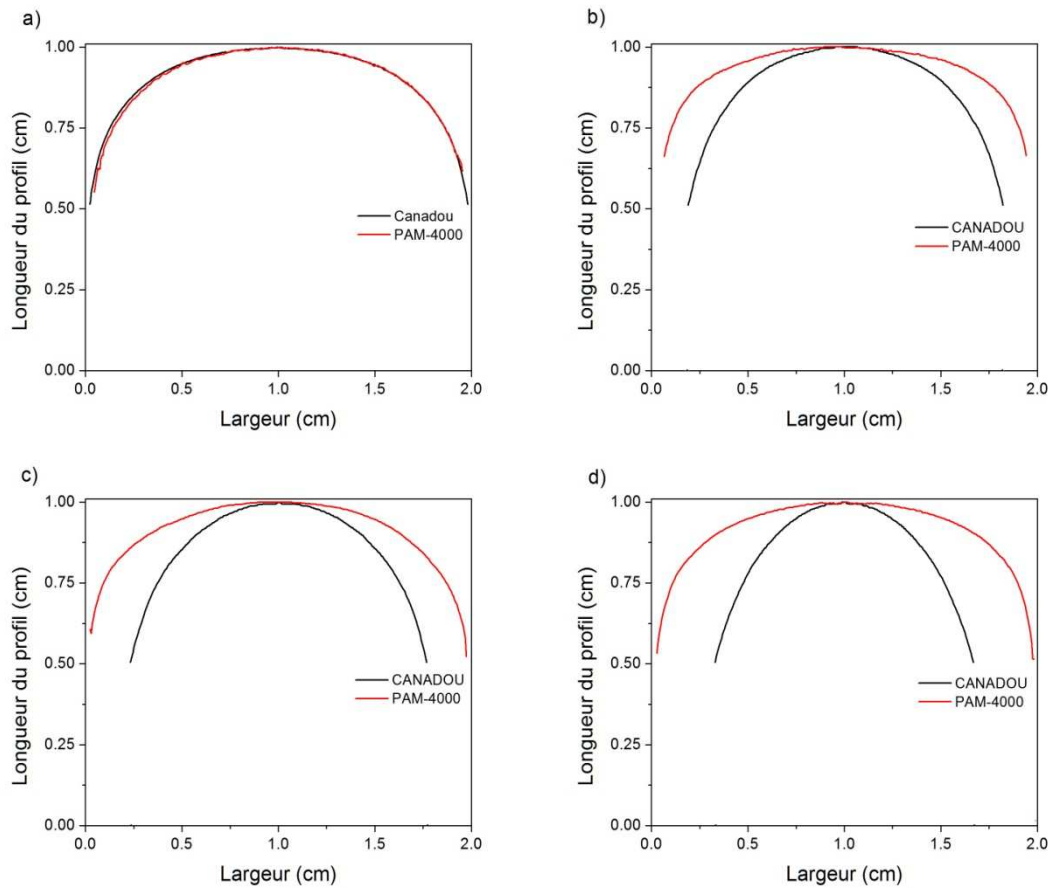




**Figure 88** : Comparaison des profils de l'interface entre Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) et XAN-5000/huile de silicone avec **a)**  $v_{fi}=5$  cm/s,  $\eta_{\text{XAN-5000}}=0,06$  Pa.s,  $\eta_{\text{Huile}}=0,005$  Pa.s et **b)**  $v_{fi}=8$  cm/s,  $\eta_{\text{XAN-5000}}=0,035$  Pa.s,  $\eta_{\text{Huile}}=0,005$  Pa.s.

#### 4.1.4 Impact du caractère viscoélastique du fluide

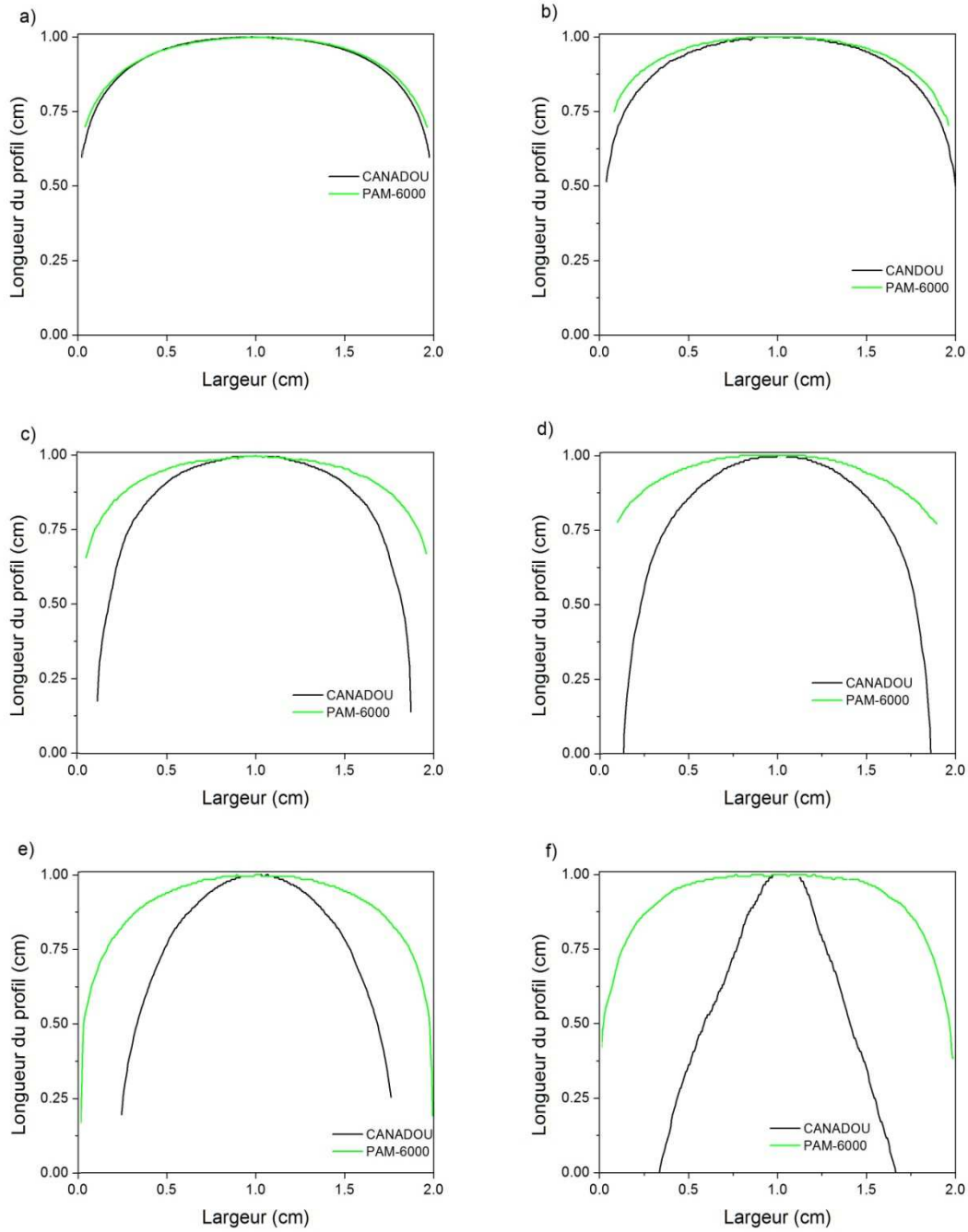
Examinons maintenant les résultats obtenus avec la formulation PAM-4000. Les différences avec le fluide newtonien sont peu sensibles aux faibles vitesses (voir Figure 89a), c'est-à-dire en-dessous de 1cm/s. Des différences sensibles dans la forme des profils apparaissent pour des vitesses plus élevées : les profils du fluide newtonien sont plus courbés que ceux du fluide viscoélastique (voir Figure 89b,c,d). L'écart entre les deux profils s'accroît lorsque la vitesse augmente.



**Figure 89** : Comparaison des profils de l'interface entre Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) et PAM-4000/huile de silicone. **a)**  $v_{fi}=1$  cm/s,  $\eta_{\text{PAM-4000}}=0,13$  Pa.s,  $\eta_{\text{Huile}}=0,1$  Pa.s, **b)**

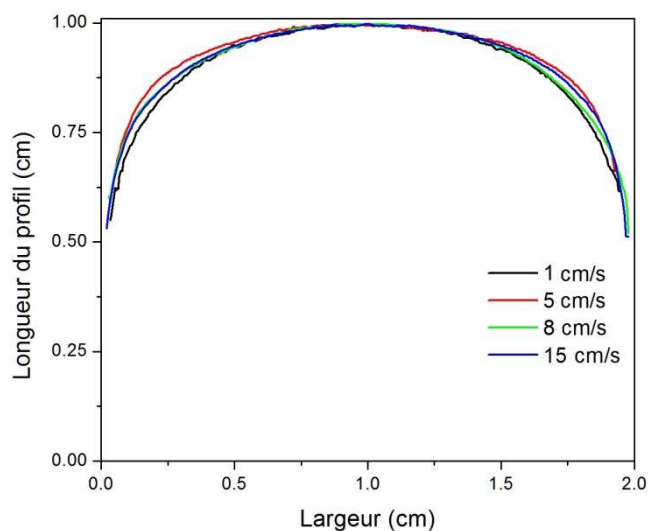
$v_{fi}=5$  cm/s,  $\eta_{PAM-4000}=0,095$  Pa.s,  $\eta_{Huile}=0,005$  Pa.s,    **c)**  $v_{fi}=8$  cm/s,  $\eta_{PAM-4000}=0,086$  Pa.s,  $\eta_{Huile}=0,005$  Pa.s    **d)**  $v_{fi}=15$  cm/s,  $\eta_{PAM-4000}=0,076$  Pa.s,  $\eta_{Huile}=0,005$  Pa.s.

Pour la formulation PAM-6000, on observe une différence entre les deux profils à partir d'une vitesse un peu plus faible que pour le PAM-4000, puisqu'à 1cm/s on voit déjà un décalage entre les deux profils (newtonien / viscoélastique) (voir Figure 90b) (alors qu'à cette même vitesse 1cm/s on n'observait pas de différences entre les profils pour le PAM-4000). Ensuite l'écart entre les profils des deux fluides augmente avec la vitesse (voir Figure 90) de la même façon que pour le PAM-4000. Cependant, pour une vitesse donnée identique, l'écart avec le profil obtenu avec un fluide newtonien est plus important pour le PAM-6000 que pour le PAM-4000.

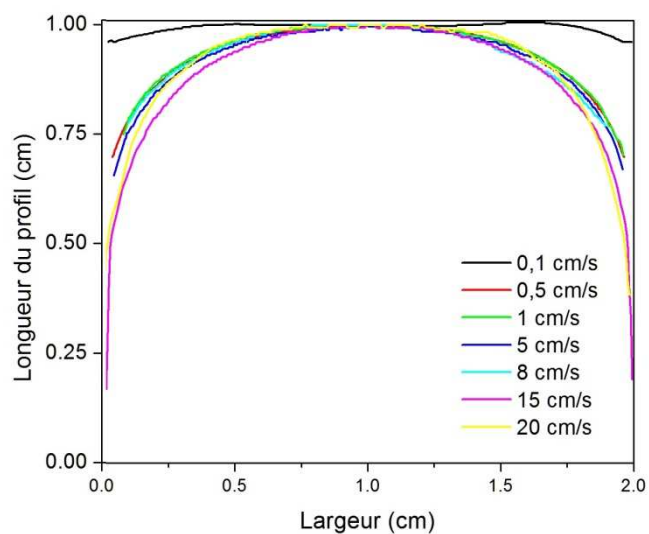


**Figure 90 :** Comparaison des profils de l'interface entre Canadou ( $\eta = 0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta = 0,1$  Pa.s) et PAM-6000/huile de silicone. **a)**  $v_{fi} = 0,5$  cm/s,  $\eta_{\text{PAM-6000}} = 0,32$  Pa.s, **b)**  $v_{fi} = 1$  cm/s,  $\eta_{\text{PAM-6000}} = 0,26$  Pa.s **c)**  $v_{fi} = 5$  cm/s,  $\eta_{\text{PAM-6000}} = 0,16$  Pa.s, **d)**  $v_{fi} = 8$  cm/s,  $\eta_{\text{PAM-6000}} = 0,14$  Pa.s, **e)**  $v_{fi} = 15$  cm/s,  $\eta_{\text{PAM-6000}} = 0,12$  Pa.s et **f)**  $v_{fi} = 20$  cm/s,  $\eta_{\text{PAM-6000}} = 0,1$  Pa.s,  $\eta_{\text{Huile}} = 0,005$  Pa.s.

Pour les fluides viscoélastiques on peut constater un fait remarquable : au-delà d'une certaine vitesse la forme de l'interface est constante comme on peut le voir sur le Figure 91 et le Figure 92.

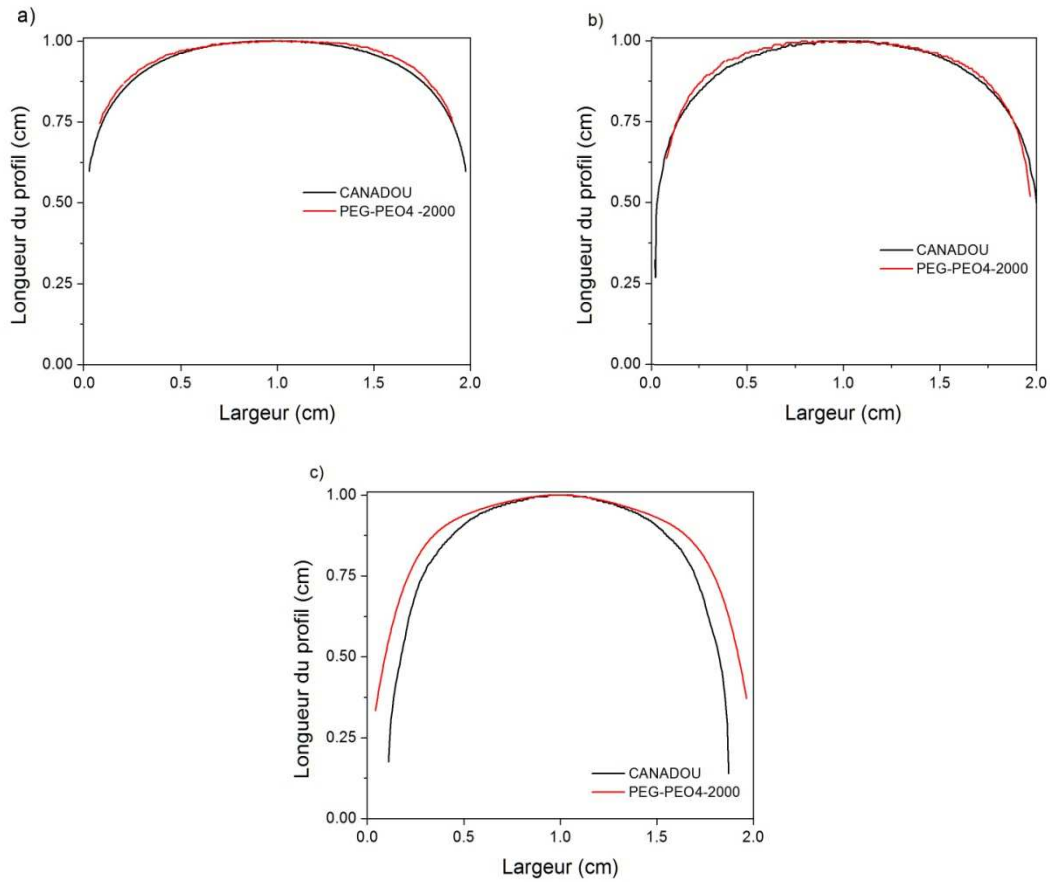


**Figure 91 :** Profils de la PAM-4000/huile silicone entre 1 cm/s et 15 cm/s.

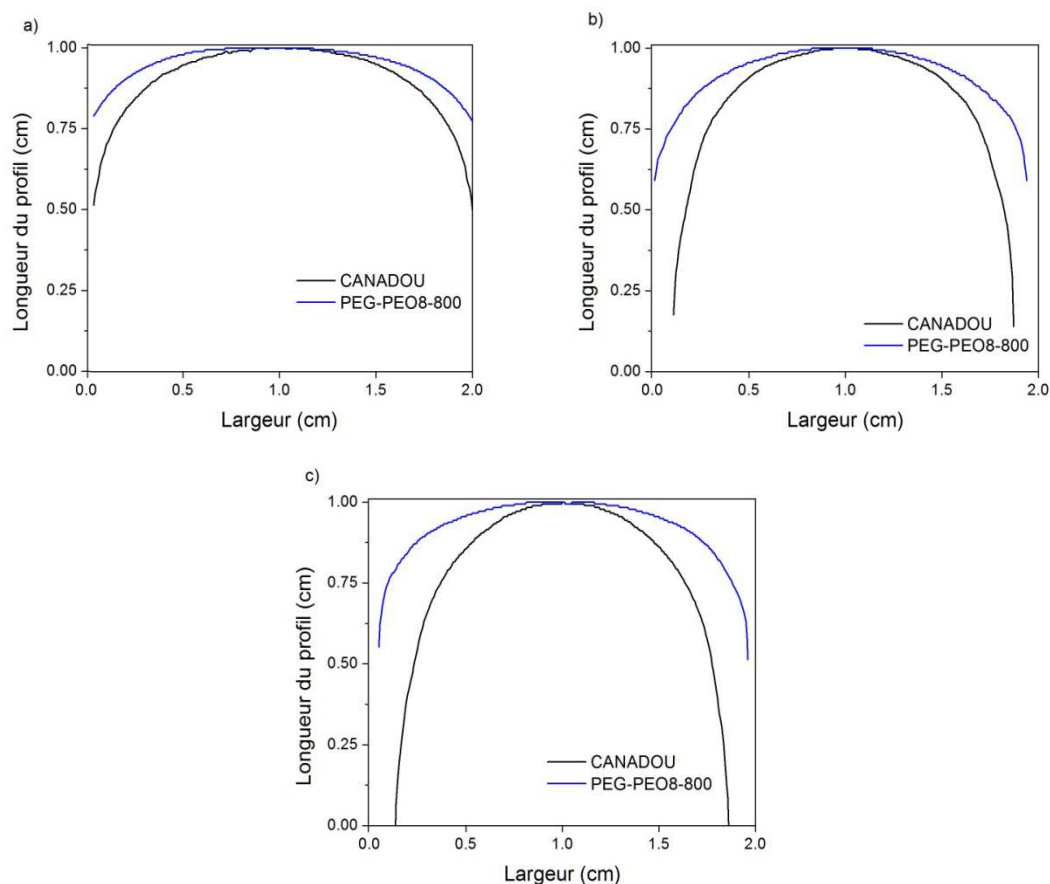


**Figure 92 :** Profils PAM-6000/huile de silicone entre 0,1 cm/s et 20 cm/s.

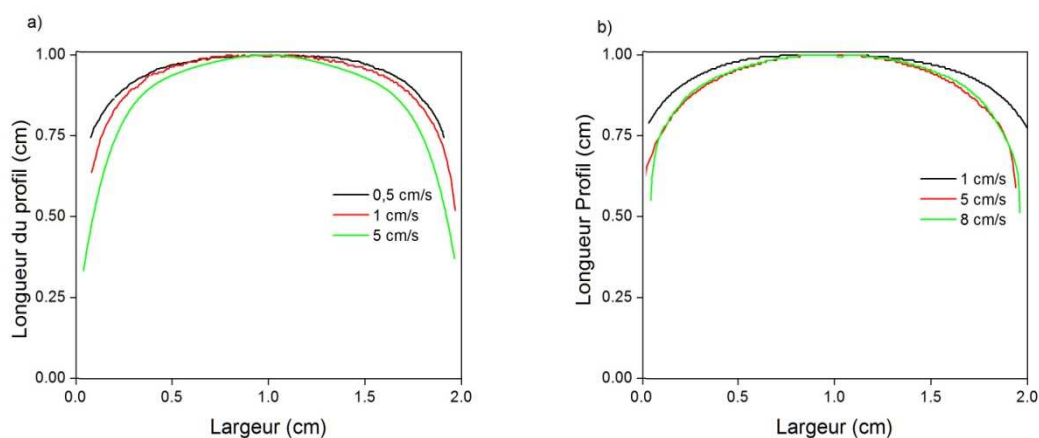
Les expériences avec le PEG PEO donnent des résultats qualitativement analogues. On constate de même que les profils entre fluide déplaçant newtonien et fluide déplaçant viscoélastique s'écartent l'un de l'autre lorsque la vitesse dépasse une valeur critique (voir Figure 93 et Figure 94), et le profil du fluide viscoélastique atteint une forme stationnaire (voir Figure 95) au-delà d'une vitesse critique. Cependant on remarque ici que la vitesse critique n'est pas la même selon les fluides utilisés : de l'ordre de 1 cm/s pour le PEG PEO 800 et de l'ordre de 5 cm/s pour le PEG PEO 2000. Elle est donc plus élevée pour le PEG PEO 2000 que pour le PEG PEO 800, ce qui suggère que cette vitesse critique doit varier avec l'importance des effets viscoélastiques.



**Figure 93 :** Comparaison des profils de l'interface entre Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) et PEG-PEO4-2000 ( $\eta=0,26$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) **a)**  $v_{fi}=0,5$  cm/s, **b)**  $v_{fi}=1$  cm/s et **c)**  $v_{fi}=5$  cm/s.

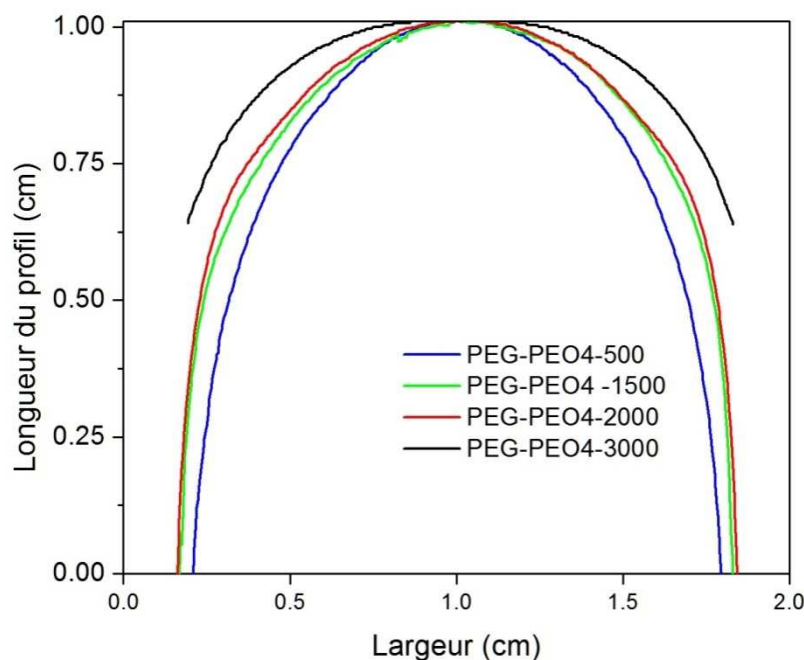


**Figure 94 :** Comparaison des profils de l'interface entre Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) et PEG-PEO8-800 ( $\eta=0,26$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) **a)**  $v_{fi}=1$  cm/s, **b)**  $v_{fi}=5$  cm/s et **c)**  $v_{fi}=8$  cm/s.



**Figure 95 :** Profils de l'interface des formulations PEG-PEO. **a)** PEG-PEO4-2000/huile silicone entre 0,5 cm/s et 5 cm/s. **b)** PEG-PEO8-800/huile silicone entre 1 cm/s et 8 cm/s.

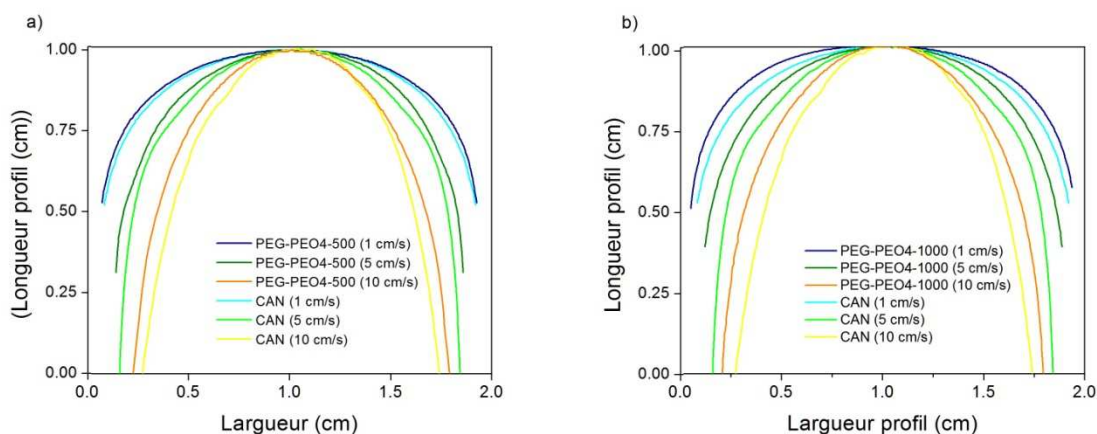
Nous avons ensuite réalisé des expériences à  $v_{fi}=5$  cm/s, suffisamment élevé pour constater des effets élastiques que nous avons constatés dans les figures précédentes, avec des formulations PEG PEO4 de concentration variant dans une large gamme (voir section 7.5.2). Nous constatons alors (voir Figure 96) que le profil est d'autant plus courbé que la concentration en PEO 4  $10^6$  g/mol est faible, autrement dit la stabilisation du profil sur une forme peu courbée intervient à des vitesses plus faibles, ou bien, et c'est l'hypothèse que nous retiendrons pour l'instant (nous revenons sur cette hypothèse dans le paragraphe suivant), la forme stabilisée du profil de l'interface est d'autant plus courbée que les effets viscoélastiques sont importants.



**Figure 96 :** Profils de l'interface des formulations PEG-PEO4 entre 500 ppm et 3000 ppm à  $v_{fi}=5$  cm/s. Longueur du profil en fonction de la largeur de la géométrie

En fait il n'est pas aussi simple d'observer les évolutions des profils avec l'importance des effets viscoélastiques. En effet, si on regarde maintenant les évolutions avec les vitesses des deux formulations les moins concentrées (500 ppm et 1000 ppm) on se rend compte, comme on s'y attendait compte tenu des observations initiales, que la transition vers la stabilisation du profil intervient à des vitesses d'autant plus faibles que les effets viscoélastiques sont faibles. Cette tendance est telle que pour le PEG PEO 500 nous

n'observons presque pas de décalage des profils newtonien/viscoélastique dans notre gamme de mesures de vitesses donnant des écoulements stables (voir Figure 97a) : on perçoit une petite différence à partir de 10cm/s. Pour le PEG PEO 1000 on commence à percevoir nettement un écart entre les profils à partir de 5cm/s (voir Figure 97b). Dans ces conditions nous ne pouvons pas être tout à fait certains que les profils utilisés pour la comparaison de la Figure 96 correspondent effectivement aux profils stables, en particulier aux plus faibles concentrations.



**Figure 97 :** Comparaison des profils de l'interface entre Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) et deux formulations PEG-PEO4/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s). **a)** PEG-PEO4-500 ( $\eta=0,22$  Pa.s) est comparé au Canadou entre  $v_{fi}=1$  cm/s et  $v_{fi}=10$  cm/s **b)** PEG-PEO4-1000 ( $\eta=0,24$  Pa.s) est comparé au Canadou entre  $v_{fi}=1$  cm/s et  $v_{fi}=10$  cm/s.

### 4.1.5 Impact de la tension de surface

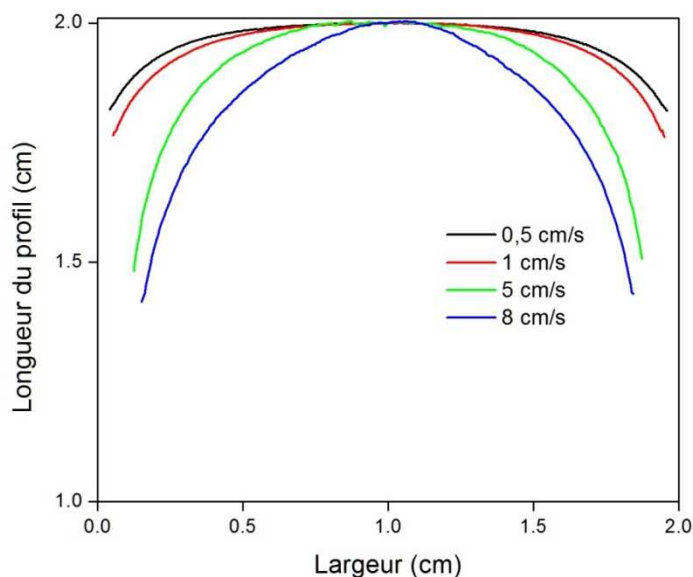
Pour observer un possible effet de la tension interfaciale, une expérience a été réalisée avec une formulation où la tension interfaciale est 10 fois plus faible que la tension interfaciale des systèmes originaux.

Nous observons globalement les mêmes évolutions du profil avec la vitesse qu'avec une haute tension interfaciale pour les deux types de fluides (voir Figure 98 et Figure 99). A noter que la forme de l'interface du fluide viscoélastique est constante à partir de  $v_{fi}=5$  cm/s (Figure 99) et il n'est pas possible réaliser des expériences de déplacement avec le fluide newtonien à  $v_{fi}>8$  cm/s car le profil devient instable.

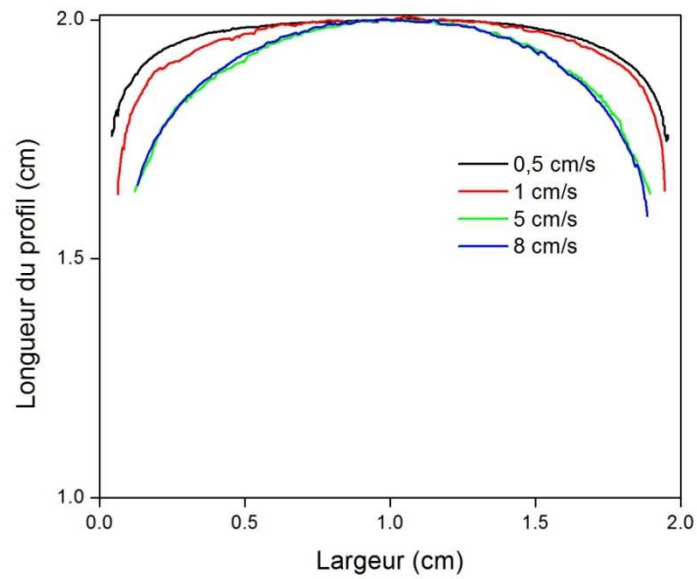


Lorsqu'on compare maintenant plus précisément la forme de chacun de ces profils pour les deux valeurs de tensions de surface et à chaque vitesse, on n'observe pas de différences sensibles dans les évolutions pour le fluide newtonien avec différentes tensions interfaciales (voir Figure 100) aux différentes vitesses. On note cependant une légère différence aux faibles vitesses, qui peut être liée au fait que la forme du profil dans ces régimes est plus influencée par des effets de tension interfaciale que par des effets visqueux (voir discussion).

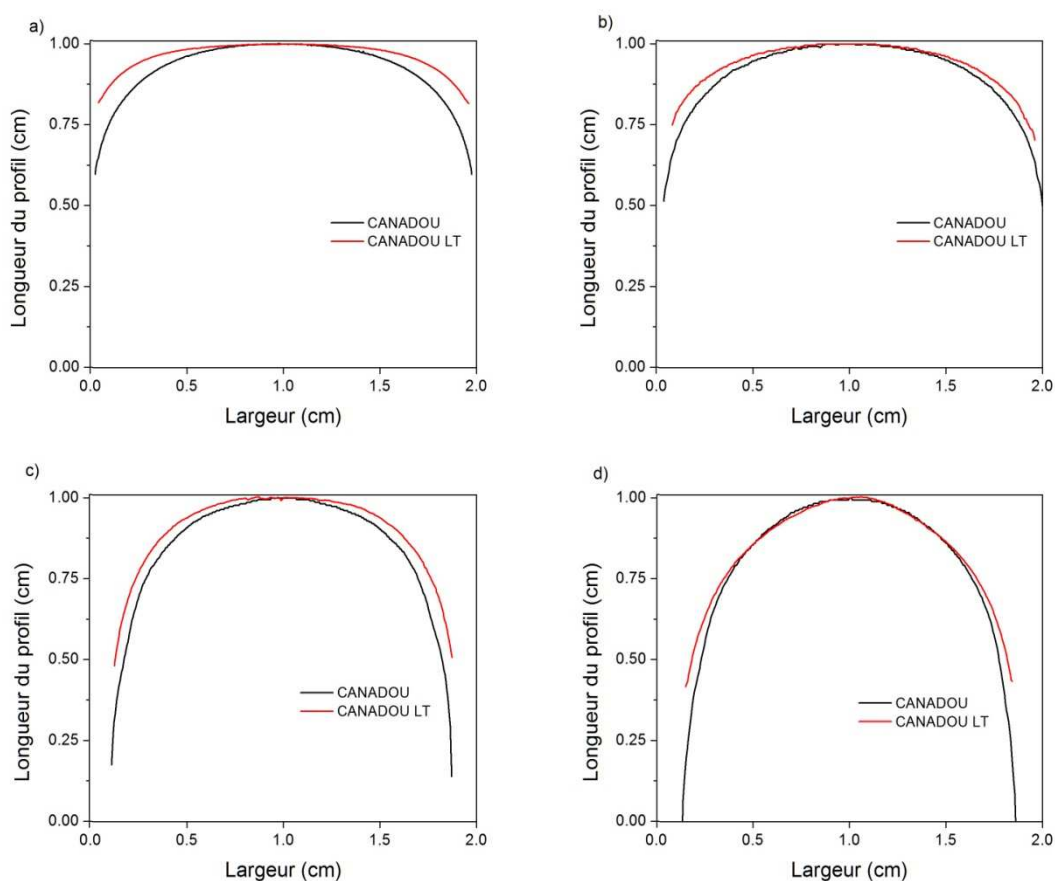
En revanche pour le fluide viscoélastique utilisé ici (PAM 6000) on constate un léger écart qui semble augmenter quelque peu avec la vitesse. Il est cependant difficile de conclure qu'il y a dans ce cas un effet sensible. En fait il paraît même peu probable que cet effet existe spécifiquement avec un fluide viscoélastique alors qu'il n'existe pas avec un fluide newtonien. Compte tenu des évolutions plus grandes de la forme des profils dans le cas newtonien l'explication la plus probable est que l'amplitude d'un effet de tension de surface soit suffisamment faible pour être masqué avec le fluide newtonien et en revanche visible sur les profils des fluides viscoélastiques qui n'évoluent pas avec la vitesse.



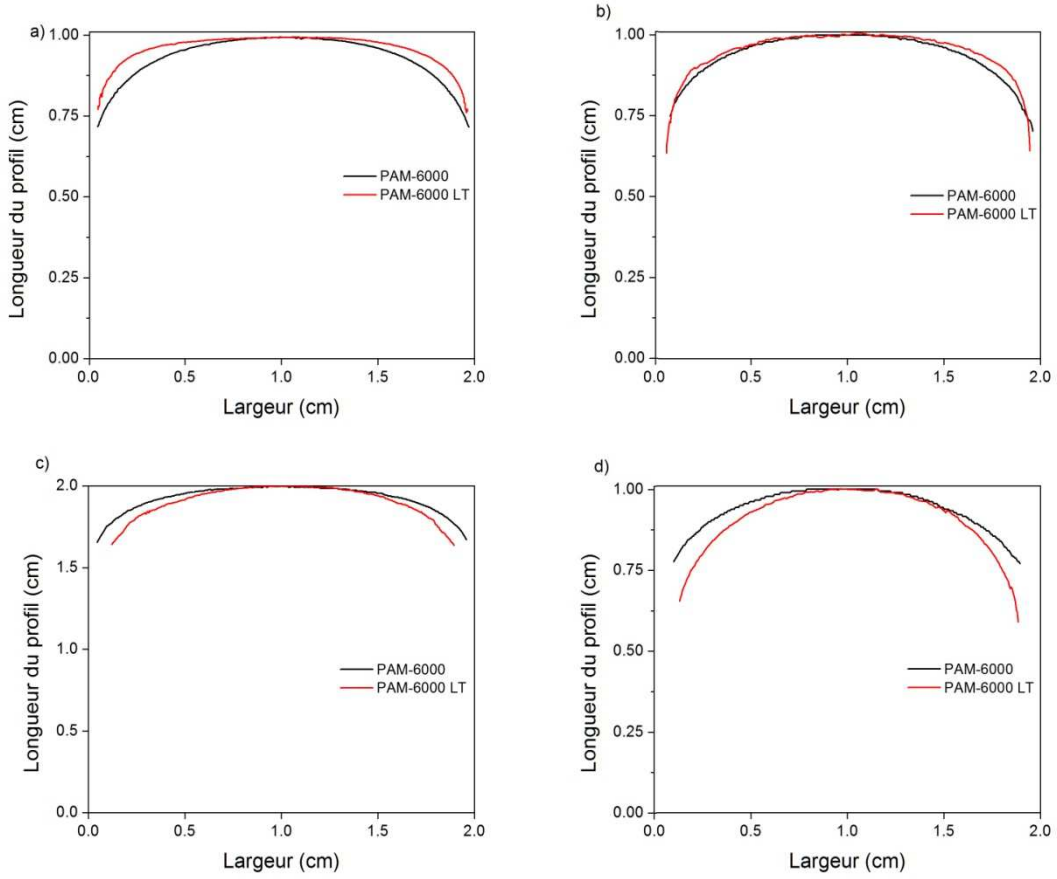
**Figure 98 :** Expériences de déplacement à faible tension interfaciale ( $\sigma=3,1$  mN/m). Profils de l'interface Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) entre 0,5 cm/s (noir) et 8 cm/s (bleu).



**Figure 99** : Expériences de déplacement a faible tension interfaciale ( $\sigma=2,8$  mN/m). Profils de l'interface PAM-6000/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) entre 0,5 cm/s (noir) et 8 cm/s (bleu).



**Figure 100 :** Comparaison entre les profils de l'interface pour l'expérience de déplacement Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) entre les systèmes originaux ( $\sigma=34,5$  mN/m) et les systèmes a faible tension (CANADOU LT :  $\sigma=3,1$  mN/m). **a)** A  $v_{fi}=0,5$  cm/s, **b)** A  $v_{fi}=1$  cm/s, **c)** A  $v_{fi}=5$  cm/s, **d)** A  $v_{fi}=8$  cm/s.



**Figure 101 :** Comparaison entre les profils de l'interface pour l'expérience de déplacement PAM-6000/huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) entre les systèmes originaux ( $\sigma=26,1$  mN/m) et les systèmes a faible tension (PAM-6000 LT :  $\sigma=2,8$  mN/m). **a)** A  $v_{fi}=0,5$  cm/s,  $\eta_{PAM-6000}=0,32$  Pa.s, **b)** A  $v_{fi}=1$  cm/s,  $\eta_{PAM-6000}=0,26$  Pa.s **c)** A  $v_{fi}=5$  cm/s  $\eta_{PAM-6000}=0,16$  Pa.s, **d)** A  $v_{fi}=8$  cm/s,  $\eta_{PAM-6000}=0,14$  Pa.s.

## 4.2 Ecoulement dans d'autres géométries

### 4.2.1 Ecoulement a travers une restriction

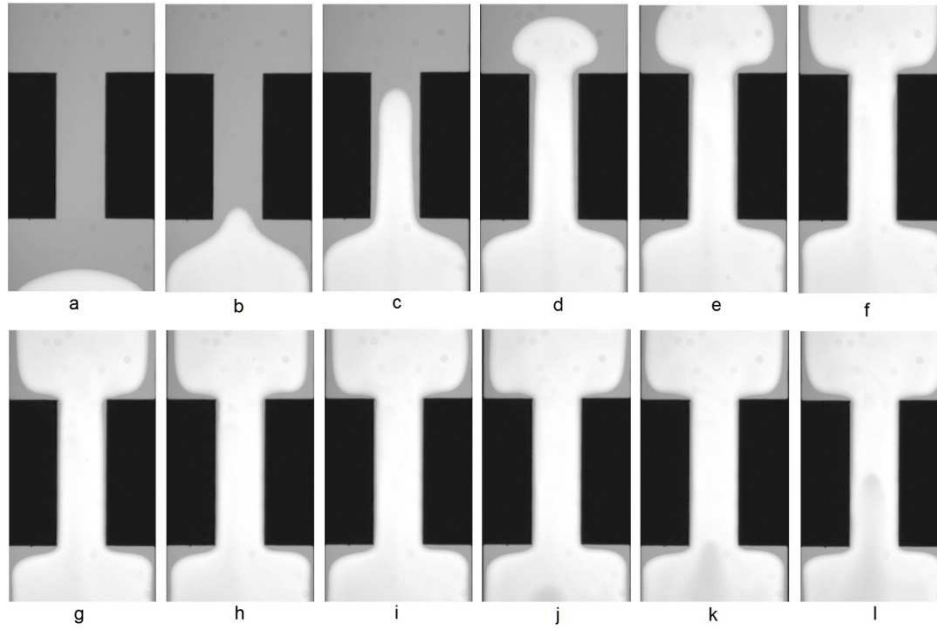
Nous avons réalisé une série d'expériences d'écoulements en restriction avec la même approche que pour les écoulements en conduite droite décrits ci-dessus : installation de l'huile dans la cellule, puis injection progressive du fluide déplaçant au-delà de la longueur d'établissement, puis repos et démarrage du test, et enfin suivi de l'interface par le dessus de la cellule. Les restrictions sont placées loin de l'entrée pour assurer que l'on atteint le régime stationnaire.

#### **Ecoulement à travers une restriction carrée (RC2)**

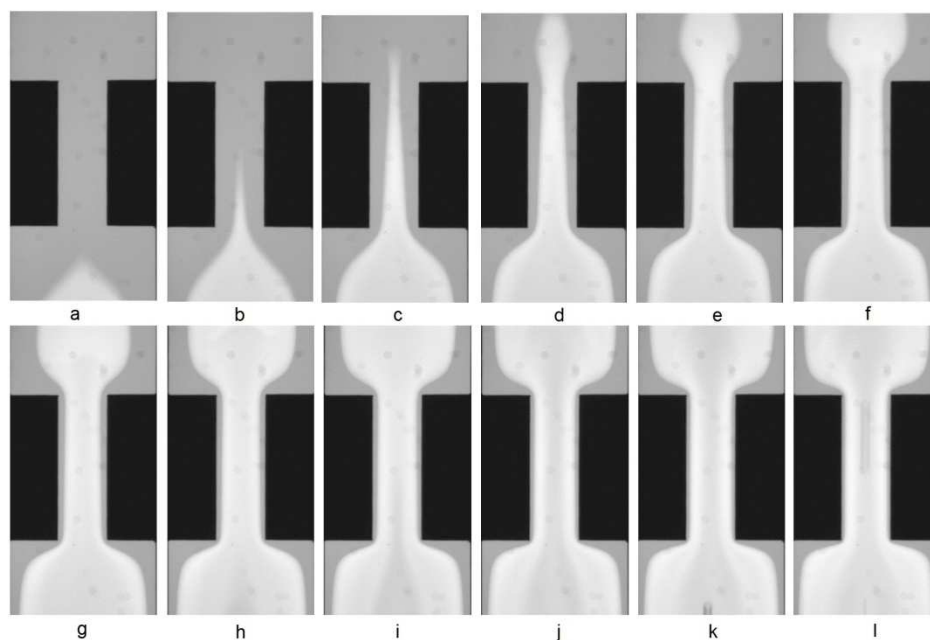
Considérons pour commencer le cas d'un fluide déplaçant newtonien. Des séries d'images présentées en Figure 102 et Figure 103 montrent les évolutions typiques du profil de l'interface au cours du temps. Le profil initial (voir Figure 102a) correspond à celui atteint en régime stationnaire dans la cellule droite. A l'approche de la restriction ce profil commence à se déformer, en s'étirant avant l'entrée dans le petit canal (voir Figure 102b,c) cet étirement est d'autant plus marqué que la vitesse est élevée (comparer Figure 102b,c et Figure 103b,c) au point qu'à 10cm/s un mince filet de Canadou commence à pénétrer le petit canal. Cet effet semble à la fois d'autant plus important que le profil initial (stationnaire) était allongé, et être amplifié par une vitesse élevée. En ce sens il est dans la continuité de l'effet d'allongement du profil observé pour le Canadou dans la cellule droite lorsque la vitesse augmente. Ensuite le filet parvient à la sortie du petit canal et s'élargit ensuite plus ou moins rapidement, formant d'abord une sorte de champignon. Cet élargissement est encore une fois d'autant plus rapide que la vitesse est faible : le champignon est d'autant plus étiré que la vitesse est élevée (cf. Figure 102d et Figure 103d). Lorsque le filet a atteint le haut de l'image l'écoulement se poursuit et le filet s'élargit progressivement pour atteindre finalement une forme stationnaire (voir Figure 102i-l et Figure 103k,l).

Il est intéressant de noter que la forme stationnaire ne dépend pas de la vitesse et est symétrique par rapport à un plan médian. On s'attendait à ce résultat qui est conforme aux caractéristiques d'un écoulement de Stokes (écoulement stationnaire d'un fluide newtonien en l'absence d'effets d'inertie et d'effets d'interface) : dans ce cas l'augmentation de vitesse ne fait qu'induire une augmentation globale des contraintes dans le système par un facteur

constant, si bien que pour un fluide newtonien le champ de vitesse obtenu est simplement multiplié par le même facteur. On constate au passage que le déplacement de l'huile par un fluide newtonien n'est pas optimal, il reste semble t-il des zones d'huile sur les cotés de l'entrée et de la sortie du petit canal qui ne seront jamais déplacées.



**Figure 102 :** Expérience de déplacement dans la restriction RC2 au cours du temps,  $v_{fi}=1$  cm/s. Le fluide déplaçant est du Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)



**Figure 103** : Expérience de déplacement dans la restriction RC2 au cours du temps,  $v_{fi}=10$  cm/s. Le fluide déplaçant est du Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s). Le fluide déplacé de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)

Les écoulements de fluides déplaçants viscoélastiques se déroulent globalement de la même façon : étirement de l'interface, pénétration dans le petit canal, élargissement à la sortie, puis établissement progressif du régime stationnaire (voir Figure 104 à 1cm/s et Figure 105, Figure 106 à 10cm/s).

On peut cependant remarquer un certain nombre de points :

- 1) A faible vitesse (1cm/s) (cf. Figure 104) les déformations de l'interface d'un fluide viscoélastique sont analogues à celles observées pour le fluide newtonien.
- 2) A forte vitesse (10 cm/s) le filet qui se forme et qui pénètre finalement dans le canal est beaucoup moins « pointu » que celui du fluide newtonien (cf. Figure 105b,c et Figure 106b,c). Cependant compte tenu du fait que le profil arrivant (depuis l'amont) est lui-même moins pointu que celui du fluide newtonien, cet effet n'est pas réellement discriminant.
- 3) Lors de la propagation dans le canal à forte vitesse, le filet du fluide viscoélastique est approximativement rectangulaire alors que celui du

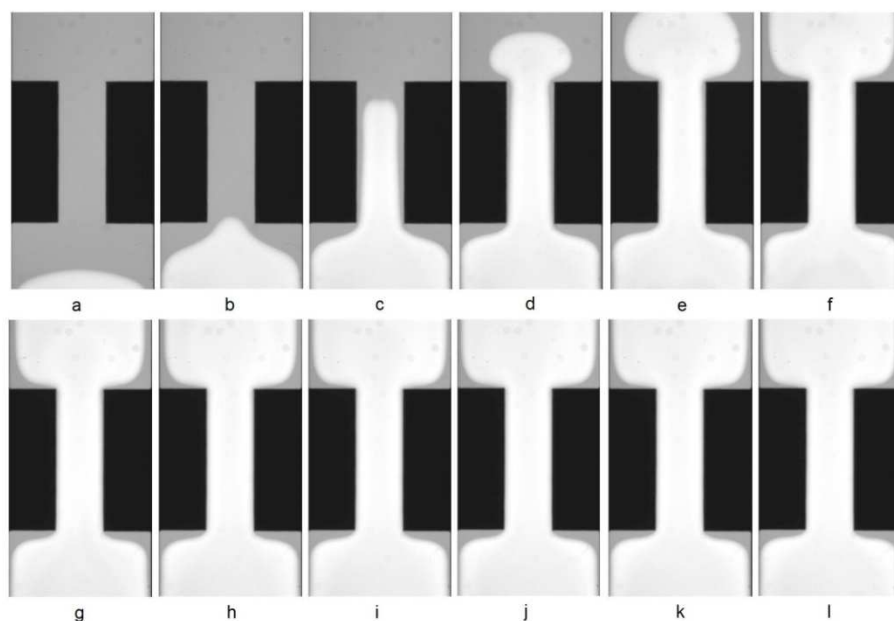
fluide newtonien est triangulaire (cf Figure 103c, Figure 105c et Figure 106c).

- 4) Lors de la sortie du petit canal le fluide viscoélastique s'élargit plus rapidement que le fluide newtonien dont le front reste assez effilé au départ.
- 5) La forme de l'interface stationnaire pour le fluide viscoélastique n'est pas symétrique et varie avec la vitesse. Plus la vitesse est grande (voir comparaisons à différentes vitesses 1, 5 et 10 pour les profils stationnaires, Figure 107 et Figure 108) plus le profil d'entrée est resserré, ce qui est en concordance des effets en écoulement monophasique (écoulements secondaires) [88;89] et plus le profil de sortie s'élargit au point de se coller contre les parois à l'extrémité du canal.

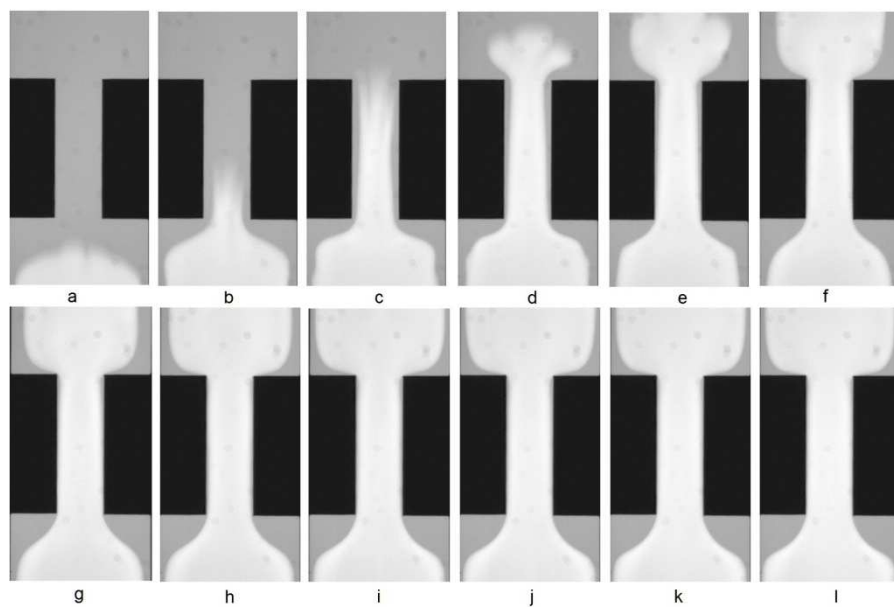
Les trois derniers points sont des caractéristiques discriminantes de l'écoulement d'un fluide déplaçant viscoélastique. On retrouve finalement à chaque fois l'effet général observé précédemment de tendance à élargir le front de propagation à travers le fluide newtonien. Cet effet est d'autant plus important que la vitesse est grande, autrement dit que les contraintes normales sont élevées. A noter qu'il existe un effet apparemment inverse à l'entrée du petit canal.

Finalement on a pu vérifier ces conclusions à partir d'expériences réalisées avec le PEG-PEO à différentes concentrations (cf Figure 108). On constate alors que la tendance à l'élargissement à la sortie du petit canal est d'autant plus marquée que la vitesse est élevée et que les contraintes normales sont importantes.

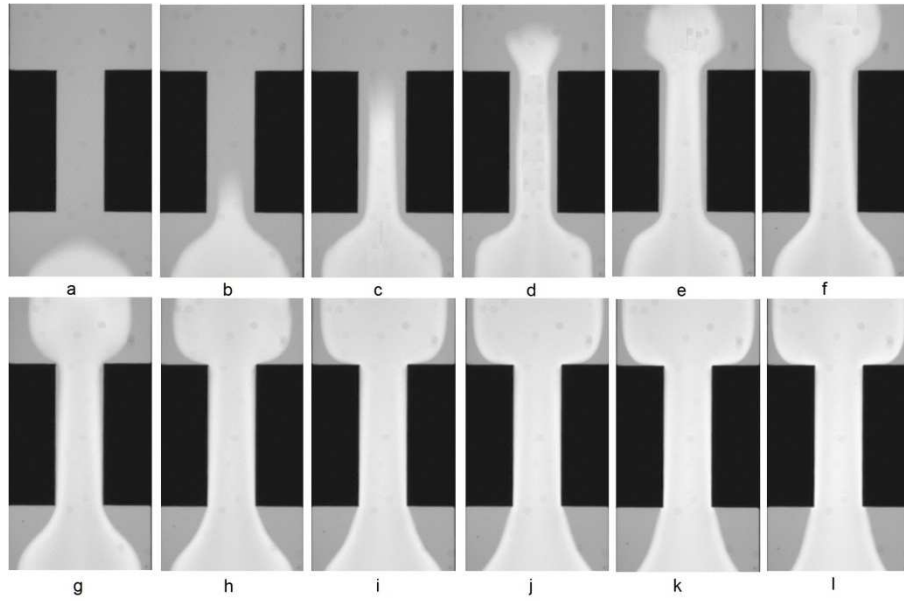




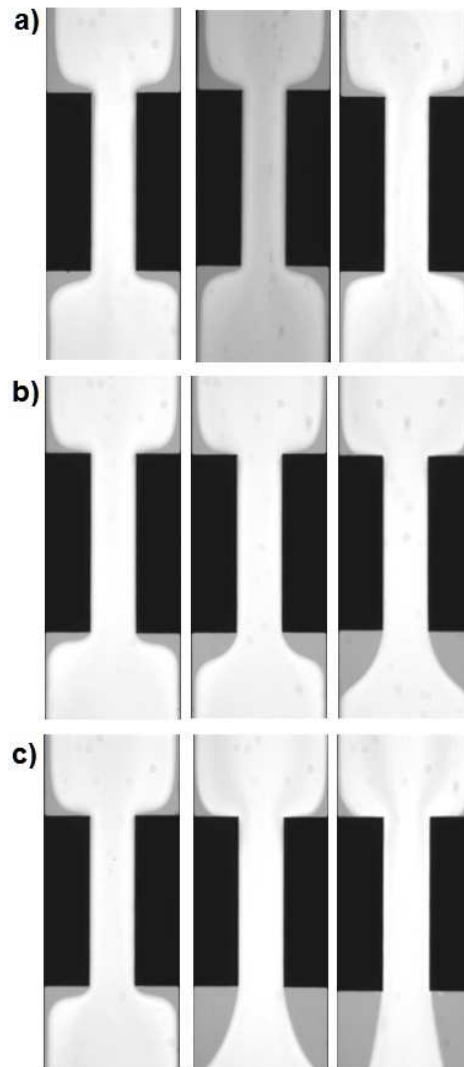
**Figure 104 :** Expérience de déplacement dans la restriction RC2 au cours du temps,  $v_{fi}=1$  cm/s. Le fluide déplaçant est du PAM6000 ( $\eta=0,19$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)



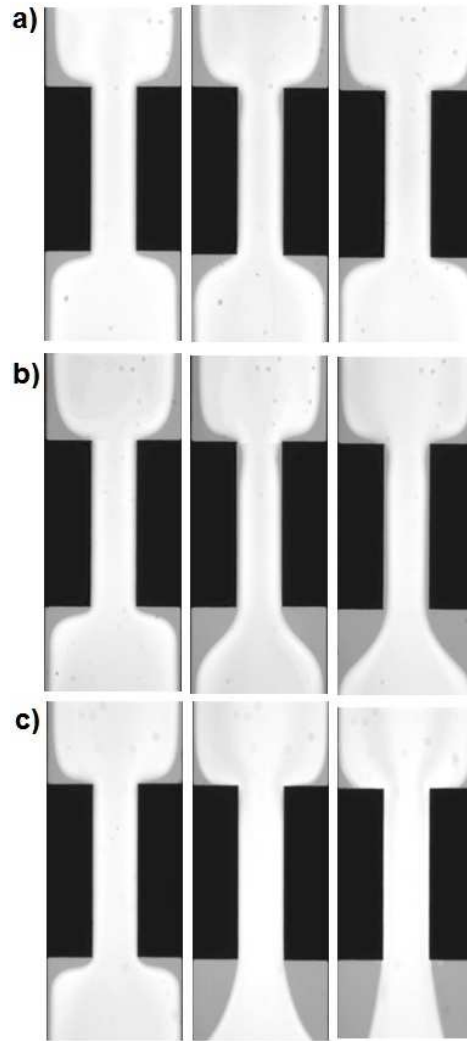
**Figure 105:** Expérience de déplacement dans la restriction RC2 au cours du temps,  $v_{fi}=10$  cm/s. Le fluide déplaçant est du PAM6000 ( $\eta=0,14$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)



**Figure 106 :** Expérience de déplacement dans la restriction RC2 au cours du temps,  $v_{fi}=10$  cm/s. Le fluide déplaçant est du PEG-PEO4-2000 ( $\eta=0,26$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)



**Figure 107 :** Expériences de déplacement dans une restriction abrupte entre 1 cm/s (gauche) 5 cm/s au centre et 10 cm/s (droite). Le fluide déplaçant est : **a)** Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s), **b)** PAM-6000 ( $\eta$  variable), **c)** PEG-PEO4-2000 ( $\eta=0,26$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s). L'écoulement se fait du bas vers le haut.

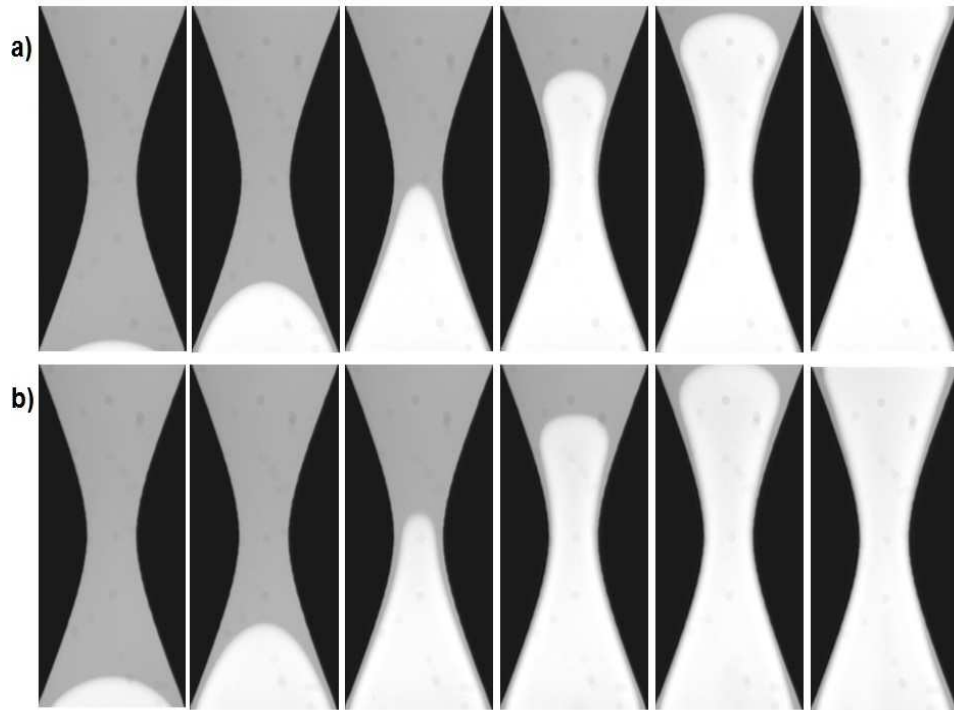


**Figure 108 :** Expériences de déplacement dans une restriction abrupte entre 1 cm/s (gauche) 5 cm/s (au centre) et 10 cm/s (droite) entre 1 cm/s (gauche) et 10 cm/s (droite). Le fluide déplaçant est : **a)** PEG-PEO4-500 ( $\eta=0,22$  Pa.s), **b)** PEG-PEO4-1000 ( $\eta=0,24$  Pa.s), **c)** PEG-PEO4-2000 ( $\eta=0,26$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)

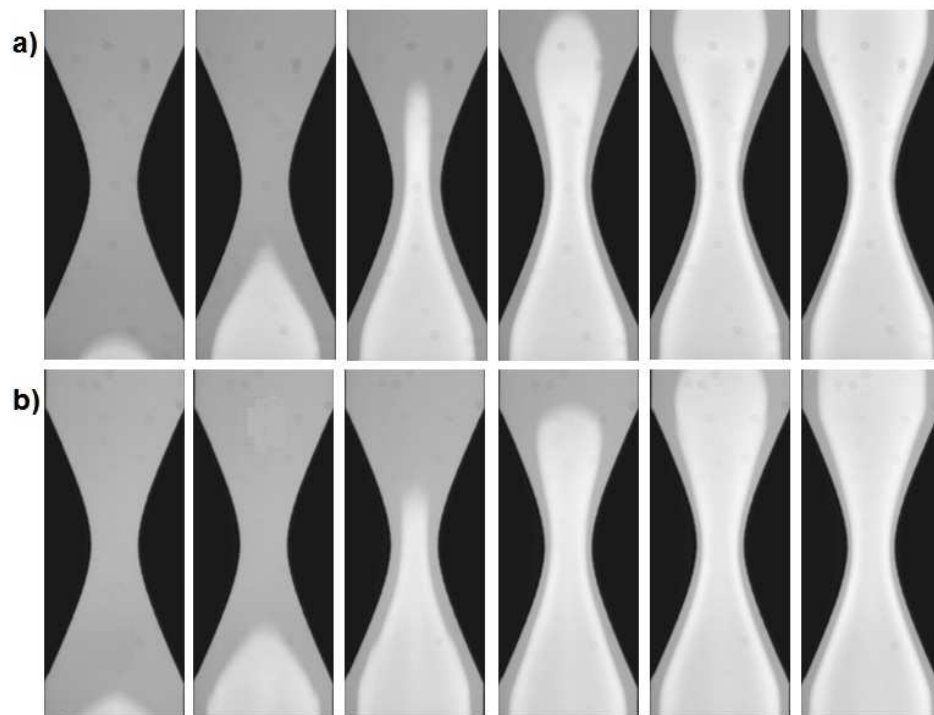
### Écoulement en restriction hyperbolique

Les évolutions des profils d'interface dans le cas des écoulements à travers les restrictions hyperboliques présentent des analogies qualitatives avec ceux observés dans la restriction carrée : on a d'abord un resserrement puis un élargissement et finalement un profil qui envahit pratiquement toute la largeur du canal (cf Figure 109a). Cependant ils ont une caractéristique surprenante : on n'observe pas d'effet du comportement rhéologique, à vitesse

égale les profils aux différentes étapes (entrée, pénétration, élargissement, établissement) du fluide newtonien et du fluide viscoélastique sont identiques (cf Figure 109 et Figure 110 par rapport aux Figure 109 et Figure 110). Il reste que les profils sont quelque peu différents pour différentes vitesses. Cet effet peut être attribué au phénomène décrit dans la section 3.1.2c où l'on considère que dans une géométrie hyperbolique comme celle utilisée pour mesurer la viscosité élongationnelle l'effet de la première différence de contraintes normales s'annule du fait de la symétrie [83]



**Figure 109 :** Expériences de déplacement dans une restriction hyperbolique à 1 cm/s. Le fluide déplaçant est : **a)** Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s), **b)** PAM-6000 ( $\eta=0,19$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)

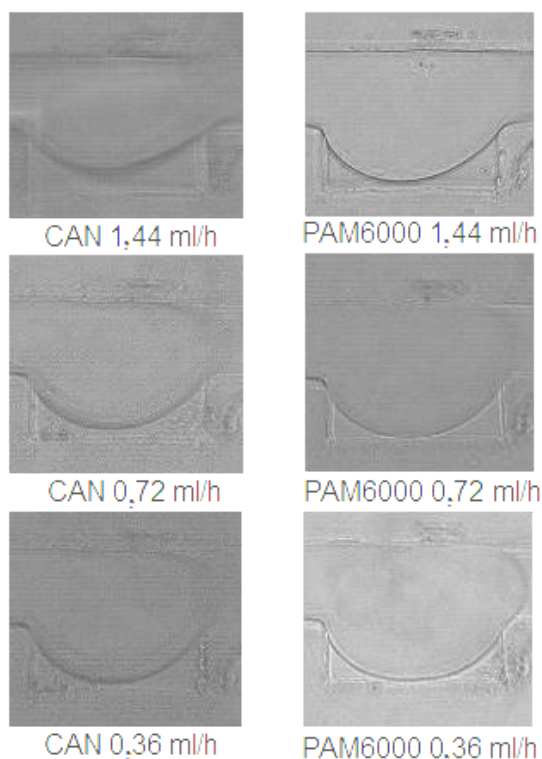


**Figure 110** : Expériences de déplacement dans une restriction hyperbolique à 10 cm/s. Le fluide déplaçant est : **a)** Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s), **b)** PAM-6000 ( $\eta=0,19$  Pa.s). Le fluide déplacé est de l'huile de silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)

## 4.2.2 Expériences en canal microscopique (Microfluidique)

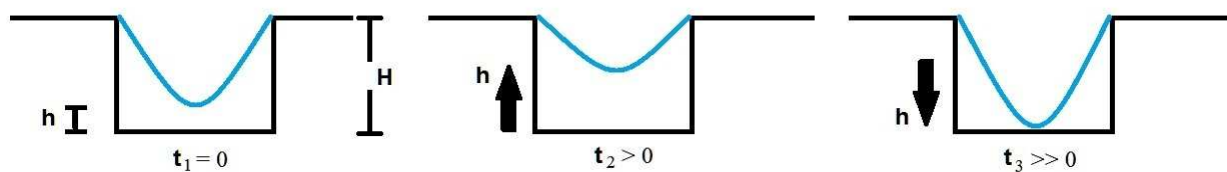
### 4.2.2.a Déplacement a débit constant

Une première expérience avec du Canadou et du PAM-6000 a été réalisée à des débits compris entre 0,36 ml/h et 1,44 ml/h. Dans cette géométrie, ces débits correspondent à des gradients de vitesse moyens de  $50 \text{ s}^{-1}$  et  $200 \text{ s}^{-1}$  respectivement, les mêmes qu'obtenus pour certaines expériences dans la cellule de Hele-Shaw. Les effets viscoélastiques notables sont attendus en terme de contraintes normales significatives à partir de  $50 \text{ s}^{-1}$  avec l'apparition des contraintes normales de magnitude 30 Pa. La pénétration instantanée des fluides dans le pore le plus large de la géométrie est montrée dans la Figure 111.



**Figure 111 :** Pénétration des fluides dans le premier pore de la géométrie débit imposé. Les photos sont prises 60 ms après l'entrée du front dans le pore. L'écoulement se fait de la gauche vers la droite.

Nous observons avec ces expériences à débit constant qu'une invasion d'une fraction importante du pore par le fluide déplaçant se fait en grande partie dès l'entrée de celui-ci (Figure 112). Comme on le voit dans cette figure, le fluide remplit instantanément le pore ( $t_1$ ), puis il libère progressivement une partie du pore (le front remonte jusqu'à une hauteur  $h$  maximale dans un temps  $t_2$ ) et enfin pénètre à nouveau pour remplir complètement le pore ( $t_3$ ).

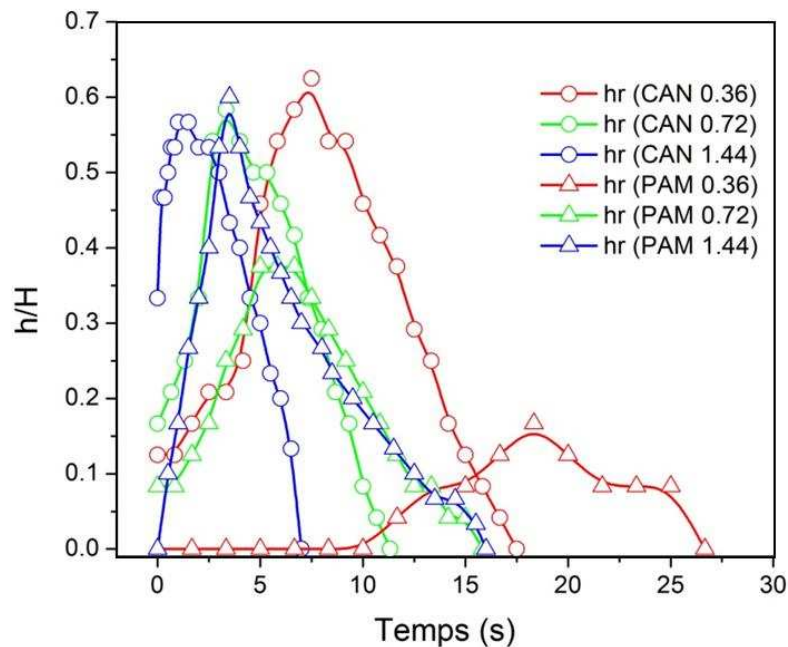


**Figure 112 :** Évolution dans le temps de la position de l'interface fluide déplaçant/Huile dans le pore lors de l'injection de la phase aqueuse dans la géométrie.

Ce comportement s'avère parfaitement reproductible. Nous n'avons pas pour le moment d'interprétation associée, mais les hypothèses qui peuvent être envisagées sont :

- l'apparition d'une dépression dans le fluide déplaçant dû à son entrée, en aval de l'écoulement et du pore considéré, dans une partie du microsysteme avec un confinement plus faible (plot de connexion des tubes par exemple), créant une succion capillaire, comme présenté dans l'article [90]
- une conséquence de l'accumulation de l'huile récupérée (drainée) en amont du pore lors de l'écoulement de la phase aqueuse.
- une conséquence des propriétés mécaniques du matériau constitutif du microsysteme, le PDMS présentant une certaine élasticité.

A partir de l'analyse des images du déplacement du front, nous avons représenté l'évolution temporelle de la position de l'apex du front  $h$  rapporté à la profondeur du pore  $H$  (Figure 113). Le temps  $t_1 = 0$  correspond au moment où le fluide déplaçant a traversé le pore principal.



**Figure 113 :** Position relative du front de l'interface eau/huile dans le pore au cours du temps pour différentes formulations à plusieurs débits imposés. En rouge, pour 0,36 ml/h : Canadou (O),  $\eta = 0,16$  Pa.s et PAM-6000( $\Delta$ ),  $\eta=0,18$  Pa.s. En vert, pour 0,72 ml/h : Canadou (O),  $\eta = 0,16$  Pa.s et PAM-6000( $\Delta$ ),  $\eta=0,16$  Pa.s. En bleu, pour 1,44 ml/h : Canadou (O),  $\eta = 0,16$  Pa.s et PAM-6000( $\Delta$ ),  $\eta=0,14$  Pa.s

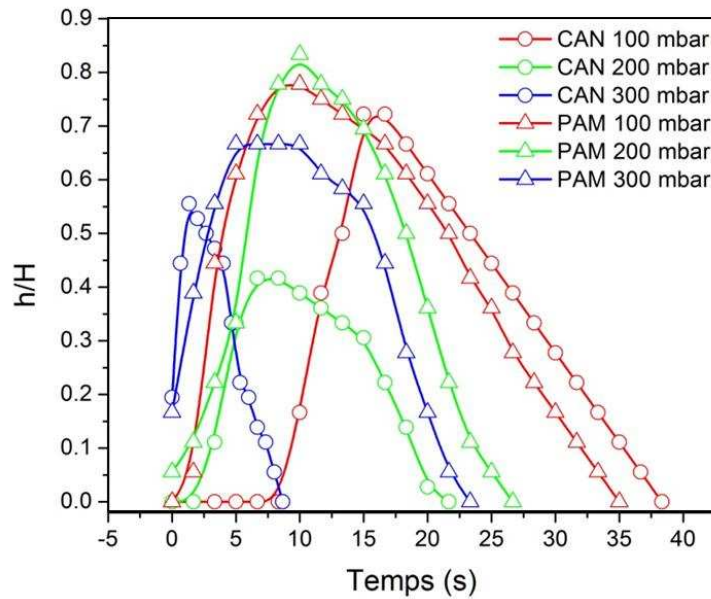


Nous observons dans la Figure 113 que pour les expériences avec le Canadou, la position  $h/H$  maximale est indépendante de la vitesse d'injection. On remarque que le phénomène évolue avec un temps caractéristique d'autant plus court que le débit est élevé. Pour le fluide viscoélastique, le PAM-6000, la position  $h/H$  maximale augmente avec la vitesse d'injection, pour atteindre des valeurs similaires à celles du fluide newtonien à haute vitesse. De même qu'avec le fluide newtonien, mais moins distinctement, le remplissage du pore est d'autant plus long que le débit est faible. Remarquons encore le temps relativement important de remplissage initial du pore pour le PAM-6000 à faible débit.

Le remplissage des deux autres pores s'est avéré plus lent que celui du pore principal. Le comportement de remplissage de ces deux pores est également reproductible, mais contrairement au premier pore, on ne voit pas le front du fluide déplaçant remonter une fois que le remplissage commence.

#### 4.2.2.b Déplacement a pression imposée

Pour essayer de préciser les conditions d'apparition du déplacement oscillatoire de l'interface fluide déplaçant/huile, nous avons poursuivi en réalisant des expériences à pression imposée. Pour ces expériences, entre 100 mbar et 300 mbar sont imposés en surpression de la pression atmosphérique en entrée pour le fluide déplaçant. Les résultats pour la position relative de l'interface sont présentés ci-dessous (Figure 114).



**Figure 114 :** Position relative du front de l'interface eau/huile dans le pore au cours du temps pour différentes formulations à différentes pressions imposées. En rouge, pour 100 mbar : Canadou (○),  $\eta = 0,16$  Pa.s et PAM-6000(△),  $\eta=0,15$  Pa.s. En vert, pour 200 mbar : Canadou (○),  $\eta = 0,16$  Pa.s et PAM-6000(△),  $\eta=0,13$  Pa.s. En bleu, pour 300 mbar : Canadou (○),  $\eta = 0,16$  Pa.s et PAM-6000(△),  $\eta=0,12$  Pa.s.

Les écoulements à pression imposée sont toujours marqués par une entrée de la phase aqueuse, son retrait et le remplissage final du pore. La position maximale de l'interface lors du déplacement transitoire est globalement plus grande que pour les manipulations précédentes. Hormis l'observation nette d'un phénomène se produisant sur un temps d'autant plus grand que le gradient de pression est faible –ce qui rejoint les observations à débit imposé–, aucune autre tendance particulière ne semble émerger de ces expérimentations à pression imposée.

# **Chapitre 5 :**

# **Analyse et Discussion**

---



L'ensemble des expériences décrites dans le chapitre 4 met en évidence des effets liés à la viscoélasticité des fluides déplaçants sur l'interface dynamique avec un fluide newtonien de viscosité inférieure. Avant de tenter d'apporter des éléments de modélisation de ces phénomènes, nous commencerons par un bilan des résultats et quelques analyses préliminaires permettant de poser les questions relatives aux mécanismes impliqués.

## 5.1 Analyse préliminaire

Rappelons d'abord les principaux résultats obtenus dans le cas de la cellule droite:

- L'interface huile/fluide aqueux se déplace à une même vitesse macroscopique définie par le débit constant imposé ;
- L'interface, pratiquement droite au départ (une légère courbure est observée liée à la nature hydrophile de la surface) est progressivement déformée durant les premiers instants de l'écoulement ;
- La forme de l'interface atteint un état stationnaire après une certaine distance parcourue dans la cellule ;
- Cette forme est bien différenciée lorsque l'on compare le fluide Newtonien et les fluides viscoélastiques ;

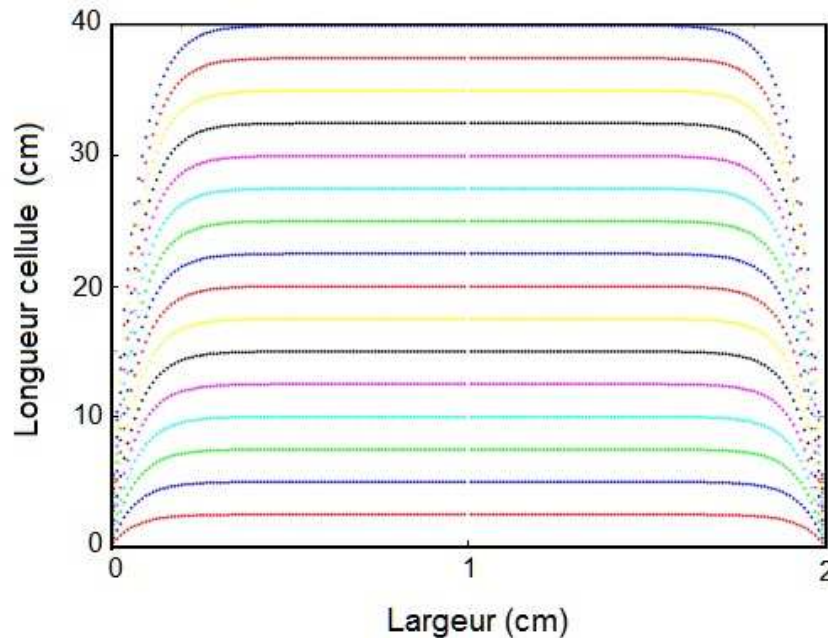
Compte tenu de la courbure des profils (vitesse maximum au centre) on peut considérer qu'un film d'huile se forme à la paroi, dont l'épaisseur dépend de la vitesse et du type de fluide.

On pourra donc d'abord tenter de comprendre l'origine de la forme différenciée de l'interface selon les types de fluide (ce qui a été abordé aussi par [91;92]), en prenant comme référence la forme obtenue dans le cas d'un fluide newtonien. Ensuite on s'intéressera à l'épaisseur apparente du film formé le long des parois, en suivant l'approche classique de Bretherton. Enfin on tentera une approche plus globale consistant à quantifier la déformation du profil et à étudier son éventuelle corrélation aux paramètres adimensionnels du problème.

### 5.1.1 Calcul de la déformation d'une "ligne" de fluide

Une première analyse de l'écoulement consiste à suivre les déformations de l'interface que l'on aurait s'il s'agissait de l'écoulement d'un fluide visqueux simple. Pour cela on va

donc calculer la déformation virtuelle d'une "ligne" de particules de fluide lors du déplacement d'un fluide unique dans une cellule de dimensions finies. On peut donc reprendre l'équation (3.36), qui correspond au champ de vitesse d'un fluide newtonien de viscosité  $\mu$  se déplaçant sous l'action d'un gradient de pression  $G$  dans une cellule de Hele-Shaw avec rapport d'aspect  $h/e$  élevé mais fini ( $h/e=10$  dans notre géométrie). La vitesse est calculée analytiquement en considérant une condition de non-glissement aux parois, (le profil de vitesse étant l'addition d'un profil de vitesse aux conditions de paroi à l'infini,  $h$  très grand, plus une contribution due à l'aspect fini du problème). Nous appliquons ce calcul à une ligne initialement plate (voir Figure 115) ce qui nous permet de suivre les positions et formes successives de cette "ligne de fluide".

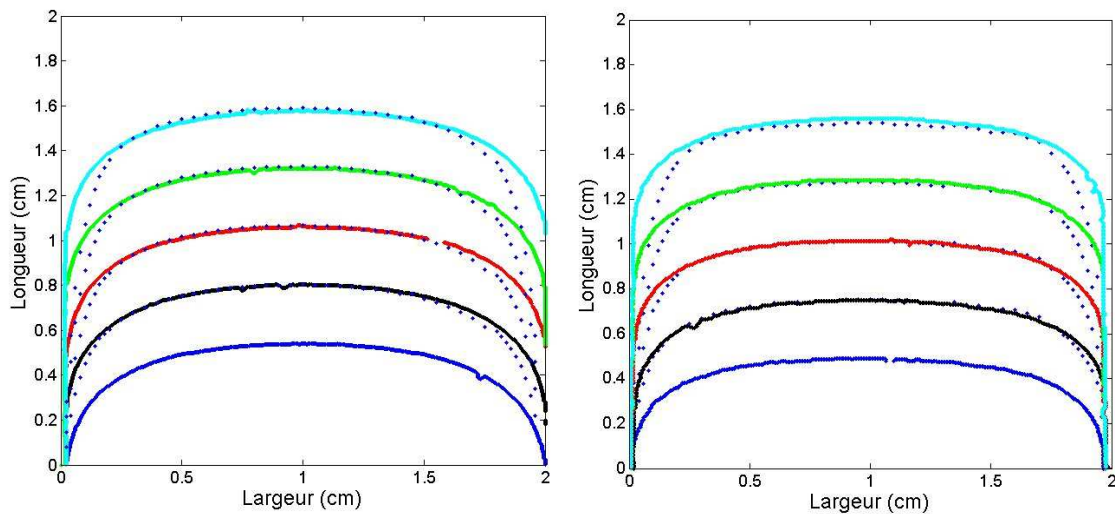


**Figure 115 :** Positions successives (intervalles de temps de 10ms) d'une ligne de fluide newtonien dans une cellule de Hele-Shaw de rapport d'aspect = 10 à une vitesse imposée de 10 cm/s.

Une première remarque élémentaire est la suivante : le profil modèle obtenu s'il varie de façon nette dans les premiers instants de l'écoulement, varie de moins en moins par la suite (au bout d'une quarantaine de centimètres d'écoulement, on ne distingue pratiquement plus les profils à  $t$  et  $t + 10$  ms). Ceci semble nous fournir un début d'explication du fait que nous observons un profil stationnaire au-delà d'une certaine hauteur d'écoulement (voir chapitre 4 et par exemple figure 79). Ensuite on peut noter la forte différence entre la courbure du front : nulle dans ce cas modèle, et celle du cas expérimental : nette, avec un

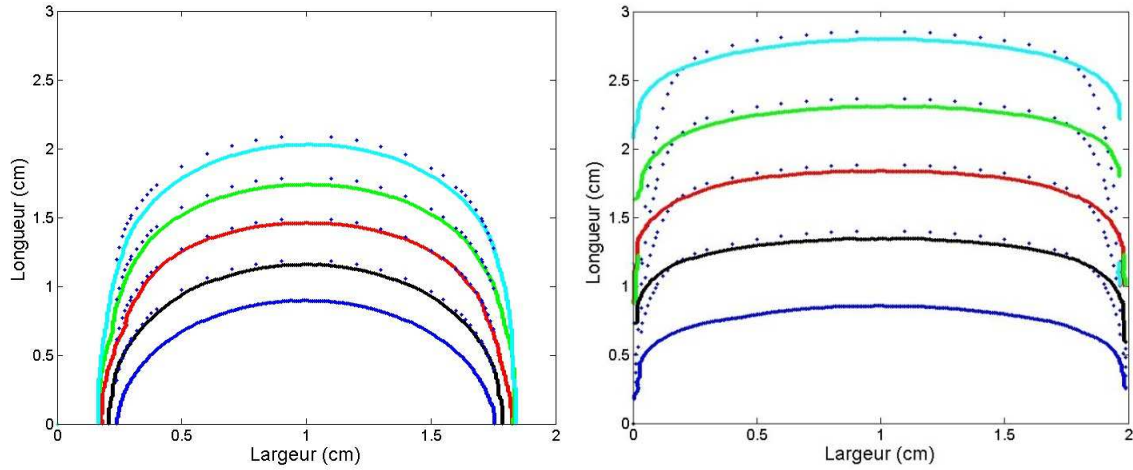
rayon de courbure de l'ordre de la demi-largeur de la cellule. Ceci suggère a priori que la tension interfaciale joue un rôle de "contention" du fluide poussant.

Regardons maintenant de plus près les prédictions de ce calcul appliqué à nos différentes conditions expérimentales. Nous représentons dans la Figure 116 et la Figure 117 les évolutions réelles de l'interface et son évolution attendue si elle n'était déformée que sous l'effet d'un transport avec le champ de vitesse (3.36). Pour cela on prend comme point de départ un profil obtenu dans la zone stationnaire. On constate que seuls les profils pour le fluide déplaçant newtonien à 10 cm/s sont bien prédits par cette théorie. En fait ceci provient simplement de ce que ces profils sont déjà bien arrondis, si bien qu'on ne voit pas les zones près des bords. Seules les régions près du centre, qui tombent dans la zone où le profil des vitesses newtonien est plat, sont visibles. Elles sont donc décalées d'une valeur constante, ce qui donne des profils apparemment stationnaires. En revanche tous les autres profils quel que soit le type de fluide n'apparaissent pas réellement stationnaires quand on utilise cette simulation : les zones de profil situées près des parois sont sensiblement plus déformées au cours de l'avancement que les profils observés expérimentalement. Ceci suggère qu'il y a un effet supplémentaire, non pris en compte dans la théorie, qui tend à maintenir la forme du profil en dépit des effets visqueux. Ce pourrait être des effets capillaires [93;94] ou plus probablement un demouillage en amont de l'écoulement. Nous reviendrons sur cette question dans le cadre de l'analyse plus complète proposée au paragraphe 5.2.



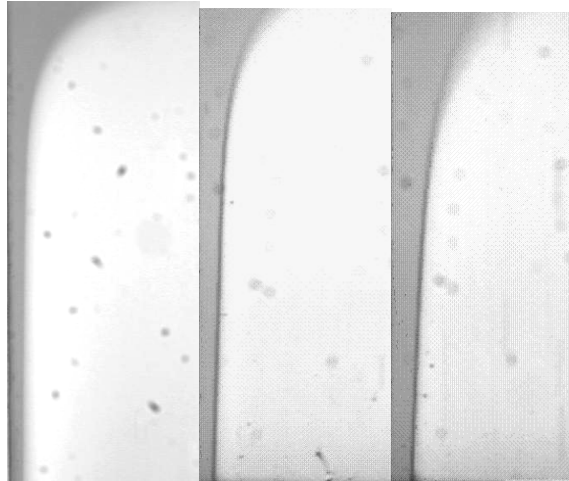
**Figure 116 :** Evolution temporelle de l'interface dans le cas newtonien et dans le cas viscoélastique à  $v_{fi}=1\text{cm/s}$  et comparaison au profil prédit dans le cas d'une déformation due à un simple transport

visqueux (points) de l'interface située tout en bas des figures. A gauche, Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s). À droite, PMA-6000 ( $\eta=0,19$  Pa.s)/huile silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)



**Figure 117 :** Evolution temporelle de l'interface dans le cas newtonien et dans le cas viscoélastique à  $v_{fi}=5$  cm/s et comparaison au profil prédit dans le cas d'une déformation due à un simple transport (points) de l'interface situé en bas des figures. A gauche, Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/huile silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s). À droite, PMA-6000 ( $\eta=0,116$  Pa.s)/huile silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s)

### 5.1.2 Analyse de l'épaisseur du film à la paroi



**Figure 118 :** Epaisseur de la couche d'huile qui reste accroché aux parois. Expériences de déplacement Canadou ( $\eta=0,16$  Pa.s)/Huile Silicone ( $\eta=0,1$  Pa.s) à  $v_{fi}$  variable. De gauche à droite, 5 cm/s, 8 cm/s et 15 cm/s

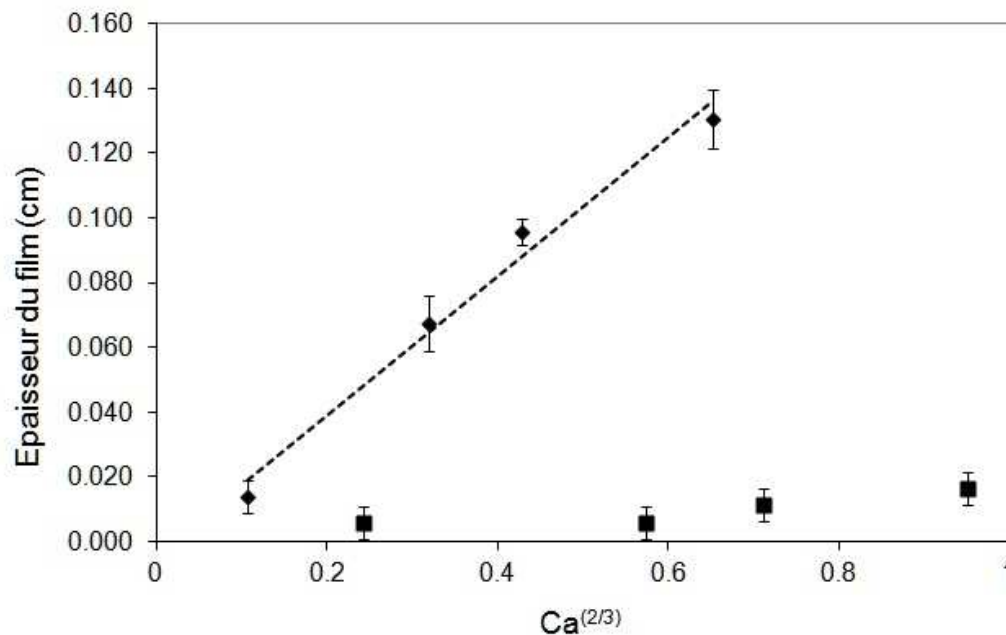


Bretherton [95] a calculé l'épaisseur d'un film qui apparaît entre une longue bulle d'air se déplaçant dans un tube rempli d'un liquide visqueux et la paroi du tube. La bulle (de viscosité négligeable) est déplacée à une vitesse  $v$  dans un tube horizontal rempli d'un fluide de viscosité  $\mu$ , dans un régime où le nombre de Reynolds est faible et pour lequel l'influence de la gravité est négligeable.

Dans une géométrie où le rayon caractéristique est noté  $b$ , la loi de Bretherton (pour des nombres capillaires  $Ca$  faibles) peut être écrite de la façon suivante [5] avec  $e$  l'épaisseur limite du film visqueux :

$$e \approx bCa^{2/3} \quad (5.1)$$

Nous avons mesuré le film qui apparaît dans les expériences de déplacement avec le fluide newtonien et viscoélastique entre  $v_{fi} = 1\text{cm/s}$  et  $15\text{ cm/s}$ . Dans chaque cas nous utilisons le profil stationnaire, et mesurons l'épaisseur du film le long des deux parois à une distance de 4cm du front (en moyennant en outre sur deux expériences). Les résultats sont présentés en fonction de  $Ca^{2/3}$  sur la Figure 119



**Figure 119 :** Epaisseur de la couche d'huile à la paroi dans les expériences de déplacement avec le Canadou (◆) et le PAM-6000 (■) en fonction de  $Ca^{2/3}$ . La droite de régression pour le Canadou (ligne pointillée) correspond à une pente de 0,22 cm.

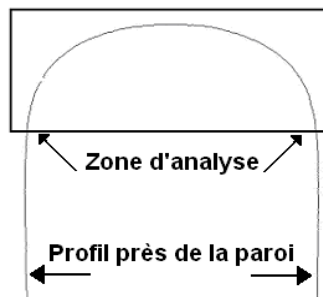
Les résultats montrent (voir Figure 119) que l'épaisseur de la couche d'huile avec un fluide newtonien déplaçant semble être bien représentée par l'équation (5.1) avec un coefficient d'ajustement ( $b=0,22\text{cm}$ ) de l'ordre de l'épaisseur de la cellule d'essais ( $0,2\text{ cm}$ ). Ceci suggère encore que le déplacement près de la paroi dans ces conditions est fortement influencé par des effets capillaires. Cependant avec le fluide viscoélastique l'épaisseur du film est très faible et pas du tout représentée par la loi de Bretherton, ce qui suggère que dans ce cas les effets capillaires sont plus faibles que les effets viscoélastiques.

### 5.1.3 Quantification globale de la déformation de l'interface

Afin de quantifier la différence observée entre les interfaces stationnaires avec un fluide Newtonien ou un fluide viscoélastique, nous proposons en première approche de mettre en place un critère macroscopique  $\varphi$  que nous appelons fraction d'huile additionnelle. Celui-ci représente le rapport entre la surface apparente d'huile "déplacée" pour un fluide donné et la surface apparente d'huile "déplacée" pour un fluide newtonien dans les mêmes conditions d'écoulement. Si cette valeur est positive, l'interface peut être considérée plus "plate" que dans le cas newtonien, ce qui indique a priori un déplacement d'huile plus efficace.

$$\varphi = \frac{\text{Surface déplacée}|_{\text{Fluide VE}} - \text{Surface déplacée}|_{\text{Canadou}}}{\text{Surface déplacée}|_{\text{Canadou}}} \quad (2)$$

Pour calculer ce critère, nous avons utilisé les profils présentés dans le chapitre 4. Les mesures ont été réalisées sur une longueur de (Figure 120).



**Figure 120** : Zone d'analyse pour calculer le paramètre  $\varphi$  correspondant à une surface de  $2\text{cm}^2$  dans la cellule d'essais.

Dans le Tableau 15 nous comparons les valeurs de ce paramètre en fonction des caractéristiques de l'écoulement exprimées à travers les valeurs des nombres adimensionnels représentant les rapports des différentes forces en jeu dans notre expérience : le nombre capillaire  $Ca$  et le nombre de Weissenberg  $Wi$

Vitesse du front (cm/s)	CAN	PAM-6000			PAM-4000			PEG-PEO8-800		
	Ca	$\phi$	Ca	Wi	$\phi$	Ca	Wi	$\phi$	Ca	Wi
0,5	0,023	0,01	0,046	0,582	*	*	*	*	*	*
1	0,046	0,03	0,083	1,164	0	0,023	0,364	0,07	0,054	8,05
5	0,229	0,23	0,292	5,821	0,21	0,040	0,728	0,22	0,257	40,6
8	0,366	0,41	0,419	9,314	0,39	0,234	3,638	0,41	0,404	65,9
15	0,686	1,11	0,677	17,46	1,09	0,352	5,821	*	*	*

**Tableau 15 :** Paramètre  $\phi$  pour différents fluides et différentes conditions d'écoulement.

Comme nous pouvons le constater, à 0,5 et 1 cm/s la forme de l'interface est très similaire ( $\phi$  est très faible) quel que soit le fluide. Avec l'augmentation de la vitesse, les forces visqueuses augmentent de façon similaire pour tous les fluides (la valeur de  $Ca$  est quasiment la même), alors que  $\phi$  augmente nettement. La seule différence notable réside dans la valeur de  $Wi$ , qui varie de 0,58 à 17,5 pour le PAM 6000, et de 8,05 à 65,9 pour le PEG-PEO.

Les résultats des expériences à faible tension sont rassemblés dans le Tableau 16, et nous pouvons constater qu'une augmentation de  $Ca$  d'un facteur de 10 ne change pas les tendances observées ci-dessus, le paramètre  $\phi$  augmente au fur et mesure que la vitesse et  $Wi$  augmentent. Cependant, cette diminution des forces interfaciales (augmentation des forces visqueuses) semble atténuer l'effet élastique car si nous comparons le paramètre  $\phi$  à la vitesse de 8cm/s entre les deux conditions (haute et faible tension), nous pouvons constater qu'il est deux fois plus grand si la tension est plus haute.

Vitesse du front (cm/s)	PAM-6000			Fluide Newtonien
	$\phi$	Ca	Wi	Ca
0,5	0	0,429	0,582	0,256
1	0,004	0,774	1,164	0,512
5	0,04	2,721	5,821	2,549
8	0,18	3,905	9,314	4,074

**Tableau 16 :** Paramètre  $\phi$  pour les expériences à faible tension de surface.

Par ailleurs nous pouvons voir clairement que la forme du profil est influencée par le niveau d'élasticité du fluide :  $\phi$  est toujours plus grand pour le fluide PEG-PEO4-1000 que pour le PEG-EPO4-500 à la même vitesse. (Tableau 17)

Vfi (cm/s)	CAN	PEG-PEO4-500			PEG-PEO4-1000		
	Ca	$\phi$	Ca	Wi	$\phi$	Ca	Wi
1	0,046	0,009	0,067	0,6	0,035	0,073	1,26
5	0,229	0,096	0,335	3	0,181	0,365	6,3
10	0,46	0,412	0,67	6	0,5289	0,73	12,6

**Tableau 17 :** Paramètre  $\phi$  pour les expériences avec PEG-PEO4-500 et PEG-PEO4-1000.

L'utilisation de ce paramètre  $\phi$  reste empirique, cependant nous permet distinguer un impact de Wi plutôt que de Ca dans la forme des profils.

## Conclusion

Les considérations ci-dessus nous ont permis de constater que l'obtention d'un profil stationnaire après une certaine distance est certainement liée aux faibles déformations induites par l'écoulement lorsque les effets visqueux sont prédominants. L'application brutale de l'approche de Bretherton suggère que les effets capillaires sont importants dans le cas du fluide newtonien mais négligeables par rapport aux effets élastiques lorsque ceux-ci deviennent importants. Enfin une approche globale de la forme du profil déformé suggère un impact critique de la vitesse mais faible des effets capillaires. Globalement les différentes

considérations ci-dessus ne nous permettent donc pas de dégager des tendances très claires, et surtout de quantifier le lien entre viscoélasticité et efficacité du « nettoyage » par le fluide déplaçant. L'objectif de la deuxième partie de ce chapitre va être de réanalyser le problème plus en profondeur afin de mieux comprendre les phénomènes observés pour interpréter l'ensemble des résultats obtenus dans les chapitres précédents.

## 5.2 Discussion de résultats

### 5.2.1 Écoulement en cellule de Hele-Shaw en régime stationnaire

Il est nécessaire d'abord de réexaminer les caractéristiques de cet écoulement à travers une cellule rectangulaire à la lumière de nos résultats car cet écoulement n'est pas aussi simple qu'il y paraît. Le choix de cette géométrie est habituellement conditionné par le fait que l'on s'attend à ce que dans la majeure partie du volume de fluide les caractéristiques de l'écoulement soient peu affectées par les parois latérales (les bords visibles dans nos expériences). Les caractéristiques d'écoulement peuvent être alors ramenées à un problème à deux dimensions (dans le plan  $(y, z)$  correspondant à l'épaisseur de fluide entre les deux plaques principales. A l'approche des parois latérales (aux extrémités de l'axe  $x$ ) l'écoulement est perturbé par la présence d'une paroi solide le long de laquelle la vitesse est nulle s'il n'y a pas d'effet de glissement (lié par exemple à un démouillage).

Considérons d'abord le cas d'un fluide seul occupant cette cellule. Dans le cas newtonien on sait calculer simplement les caractéristiques de l'écoulement loin des parois latérales (voir Chapitre 3). Il est aussi possible de calculer la solution pour l'écoulement d'un fluide rhéofluidifiant simple (suivant par exemple une loi d'Ostwald). On a vu également qu'il était possible de calculer la solution pour l'écoulement newtonien dans un canal de section rectangulaire (voir Chapitre 3). Pour un fluide viscoélastique en écoulement permanent uniforme dans une telle géométrie les caractéristiques d'écoulement sont uniquement liées à son comportement intrinsèque en régime permanent (voir le calcul de

section 5.3). En effet, en écoulement permanent uniforme on a affaire à un cisaillement simple, si bien que seule la viscosité apparente du matériau intervient dans la solution et la présence de contraintes normales ne conduit qu'à ajouter un terme de pression dépendant de  $z$  qui n'a pas d'impact sur le profil des vitesses qui ne dépend que du gradient de pression selon  $y$ . Autrement dit si le fluide viscoélastique a une viscosité constante les caractéristiques de l'écoulement seront identiques à celles d'un fluide newtonien à la même vitesse. On peut appliquer ce raisonnement de la même manière à un fluide viscoélastique ayant des caractéristiques rhéofluidifiantes, ses caractéristiques d'écoulement en régime permanent dans la cellule seront identiques à celles d'un fluide rhéofluidifiant non-élastique.

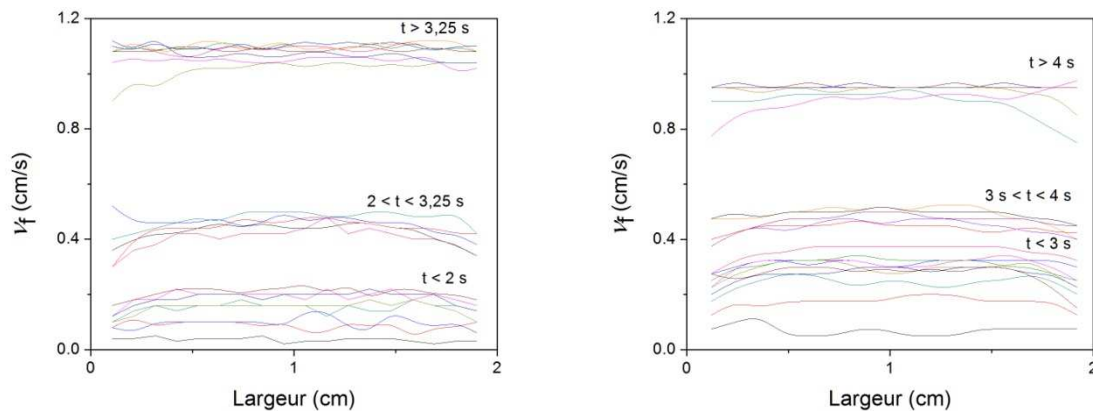
Notons enfin que les caractéristiques d'écoulement à une vitesse moyenne donnée (profil des vitesses) ne dépendent que du type de comportement et non du module de la valeur absolue du coefficient de viscosité, que ce soit pour un fluide newtonien ou rhéofluidifiant. En effet le gradient de pression s'ajuste simplement de façon proportionnelle au module de la viscosité (cf. solution de base).

En conclusion, en suivant les évolutions (déformations) d'une surface fictive initialement plane en travers de l'écoulement d'un fluide homogène simple, ou viscoélastique de même viscosité apparente, en régime permanent on ne devrait observer aucune différence entre les écoulements des deux fluides.

Regardons maintenant nos résultats en termes de profils de vitesse. Prenons par exemple les deux cas extrêmes du Canadou et du PAM-6000 montres dans le chapitre 4, et calculons le profil de vitesses apparentes en soustrayant deux à deux les profils successifs de l'interface (Figure 121). On observe alors que dans le régime stationnaire ces profils de vitesses sont en apparence tout plat, mis à part le long des parois latérales, et donc en première approche identiques quel que soit le comportement du matériau (rhéofluidifiant, viscoélastique, newtonien?). On en conclut qu'il n'est pas possible de distinguer des différences, ou l'absence de différences probable annoncée plus haut, entre un certain nombre des écoulements dans cette cellule de Hele-Shaw en régime stationnaire. Ceci provient du fait que dans ce régime cette cellule joue bien son rôle, qui consiste à localiser les effets de parois latérales, laissant le reste de l'écoulement essentiellement soumis aux effets du cisaillement dans le plan de l'épaisseur. Dans ces conditions, pour distinguer les caractéristiques d'écoulement spécifiquement induites par le comportement des matériaux dans le régime stationnaire il aurait été nécessaire d'observer l'écoulement dans le plan de pratique dans notre contexte.

### 5.2.2 Ecoulement en cellule de Hele-Shaw en régime transitoire

Regardons maintenant les caractéristiques des profils de vitesse dans la phase transitoire, c'est-à-dire depuis le début de la déformation de l'interface. On constate que les profils évoluent, ce qui est naturel puisque les profils de l'interface eux-mêmes évoluent. Ainsi donc il y a bien une phase de mise en place de l'écoulement. Un résultat fondamental à ce stade est que, compte tenu de la stationnarité des profils observée plus tard c'est bien cette phase transitoire initiale qui est à l'origine de la formation du profil de l'interface qui va ensuite avancer pratiquement en bloc comme on l'a vu dans le paragraphe ci-dessus. Ainsi donc il ne faut pas voir les profils d'interface en régime stationnaire en termes de profils de vitesse, il faut voir dans ces profils le résultat de la déformation de l'interface lors du démarrage de l'écoulement.



**Figure 121 :** Profils de vitesse de l'interface Fluide/Huile de silicone ( $\eta = 0,16$  Pa.s) en démarrage pour  $Q=0,4\text{cm}^3/\text{s}$ . A gauche, Canadou ( $\eta = 0,16$  Pa.s) et à droite PAM-6000 ( $\eta = 0,26$  Pa.s).

Examinons maintenant l'origine de la formation de ce profil d'interface. Plusieurs effets peuvent a priori jouer un rôle : les effets d'inertie, les effets visqueux, les effets d'interface, les effets de bord. Les effets de bord jouent évidemment un rôle par le fait que l'interface est attachée au bord mais ces effets sont communs à toutes les situations (différents fluides et différentes vitesses). Les effets d'interface ne semblent pas jouer un rôle important. En effet lorsqu'on varie la tension interfaciale d'un facteur 10 (voir Chapitre 4) on obtient à peu près les mêmes résultats en termes de profils d'interface. On constate une légère différence dans les profils du Canadou par exemple (Figure 100a) aux faibles vitesses mais

ceci n'est absolument pas un effet notable en regard d'une variation d'un facteur 10 de la tension, puisqu'alors le rapport des effets visqueux et des effets capillaires est multiplié par 10. Finalement aux plus fortes vitesses cette légère différence semble complètement disparaître (Figure 100d).

Ce sont donc les effets visqueux et d'inertie qui conditionnent la déformation de l'interface, qui se propage ensuite en bloc dans la cellule. La résolution des équations du mouvement en prenant en compte les caractéristiques 3D de l'écoulement et les phénomènes d'inertie est difficile. Ce problème rappelle celui de la mise en mouvement d'une plaque cisailant un fluide (5) : le cisaillement est d'abord localisé le long de la plaque puis s'étend plus largement dans le fluide. Très globalement on peut décrire le problème en considérant que ces caractéristiques résultent de la propagation du gradient de pression à travers le fluide, depuis la plaque.

Dans notre cas, en s'appuyant sur ces remarques, une manière d'envisager le problème consiste à supposer que le gradient de pression met aussi du temps à s'établir de façon homogène dans une section en travers, en partant d'une valeur maximale au centre de la cellule, pour finalement atteindre une valeur constante ( $A$ ) dans toutes les directions au sein de la cellule. Finalement on se propose de ne pas chercher à décrire vraiment les effets transitoires mais simplement l'impact du gradient de pression additionnel sur les caractéristiques de l'écoulement. Pour cela on écrit simplement le gradient de pression sous la forme  $A(1 + \xi_v(x))$ . Dans ces conditions les équations du mouvement s'écrivent :

$$\frac{\partial \tau_{yz}}{\partial z} + \frac{\partial \tau_{yx}}{\partial x} - \frac{\partial p}{\partial y} = 0 \quad (5.3)$$

tandis que la vitesse, que l'on suppose essentiellement dirigée selon  $y$ , s'écrit  $v(z, x)$ . Pour un fluide newtonien on a donc  $\tau_{yz} = \mu \partial v / \partial z$  et  $\tau_{yx} = \mu \partial v / \partial x$  ce qui donne :

$$\mu \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} + \mu \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} - A(1 + \xi_v(x)) = 0 \quad (5.4)$$

La solution la plus simple consiste à supposer que la vitesse s'écrit :  $v(z, x) = v_0(z)(1 + \varepsilon(x))$  où  $v_0$  est la solution de l'écoulement en 2D (dans l'épaisseur, loin des bords) telle que :

$$\mu \frac{\partial^2 v_0}{\partial z^2} - A = 0 \quad (5.5)$$



d'où l'on déduit que :

$$\mu \left[ \frac{\partial^2 v_0 \varepsilon}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 v_0 \varepsilon}{\partial x^2} \right] - A \xi_v(x) = 0 \quad (5.6)$$

Il est particulièrement intéressant de noter que la solution ( $v_0 \varepsilon$ ) de la seconde équation se présentera sous la forme  $v_0 \varepsilon \propto A/\mu$ , si bien que la solution complète pour la vitesse sera telle que  $v(z, x) \propto A/\mu$ .

On en déduit que le profil des vitesses modifié par la présence d'un gradient de pression transversal aux mêmes propriétés que celles de l'écoulement non modifié et décrites ci-dessus : il ne dépend que du rapport du gradient de pression imposé et de la viscosité du fluide. Ceci implique que si les effets capillaires sont négligeables deux fluides newtoniens situés l'un derrière l'autre ont les mêmes caractéristiques d'écoulement et la déformation observée pour le profil de l'interface est indépendant des viscosités de l'un et de l'autre, on a juste un saut de gradient de pression à la traversée de l'interface.

Il est intéressant de chercher maintenant à expliquer le fait que nous avons observé des profils d'interfaces analogues à des vitesses analogues pour un fluide newtonien et pour un fluide rhéofluidifiant. Ceci est a priori étonnant puisque les équations dans le cas rhéofluidifiant sont non linéaires. En fait ce résultat suggère que la déformation selon  $z$  du profil de l'interface résulte d'un écoulement secondaire, autrement dit que  $\varepsilon \ll 1$ . En effet la loi de comportement du fluide rhéofluidifiant s'exprime sous la forme tensorielle :

$$\mathbf{T} = 2^n k \left( \sqrt{-D_{II}} \right)^{n-1} \mathbf{D} \quad (5.7)$$

Si  $\varepsilon \ll 1$  alors on a  $\sqrt{-D_{II}} \approx \dot{\gamma}/2$  où  $\dot{\gamma} = \partial v_0 / \partial z$  si bien que :  $\tau_{yz} = k \dot{\gamma}^n$  et  $\tau_{yx} = k \dot{\gamma}^{n-1} v_0 \partial \varepsilon / \partial x$

Ainsi, même si l'équation pour l'écoulement principal est non-linéaire, l'équation pour l'écoulement secondaire, c'est-à-dire celle qui nous donne le terme de vitesse additionnel, est linéaire :

$$k \dot{\gamma}^{n-1} v_0 \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial x^2} - A \xi_v(x) = 0 \quad (5.8)$$

Dans cette expression le terme  $k \dot{\gamma}^{n-1}$  est tout simplement la viscosité apparente de l'écoulement principal. D'après ces résultats, si on étudie un écoulement d'un fluide

newtonien et un écoulement d'un fluide rhéofluidifiant tels que le gradient de vitesse de l'écoulement principal est le même on a le même profil des vitesses modifié selon  $x$  et donc la même déformation du profil de l'interface. Le problème est que dans l'écoulement principal entre deux plaques le gradient de vitesse n'est pas homogène et ne varie pas de la même façon pour un fluide newtonien et pour un fluide rhéofluidifiant. Du coup l'application de notre résultat à la réalité nécessite de raisonner en gradient de vitesse moyen dans l'épaisseur de la cellule. En procédant ainsi et en appliquant brutalement le résultat ci-dessus on trouve alors qu'à vitesse de déplacement égale, produisant un gradient de vitesse moyen identique, la déformation induite lors du démarrage d'un fluide newtonien et d'un fluide rhéofluidifiant sera identique.

On peut prolonger ce raisonnement selon la même approche que précédemment au cas d'un fluide rhéofluidifiant poussant un fluide newtonien en l'absence d'effets capillaires. Le résultat est alors le même que ci-dessus, du fait que le gradient de pression impose seul le déplacement selon  $y$ . On s'attend donc à une déformation de l'interface comme celle prédite par l'écoulement du fluide rhéofluidifiant ou newtonien seul.

### 5.2.3 Ecoulement en cellule de fluides viscoélastiques

Moyennant un certain nombre d'approximations qui, espérons-le, s'appuient sur des hypothèses réalistes, on a ainsi réussi à expliquer qualitativement l'ensemble de nos observations pour les fluides newtoniens et rhéofluidifiants. Les résultats avec les fluides viscoélastiques se distinguent notablement puisqu'ils conduisent à des profils d'interfaces qui n'évoluent pas du tout de la même façon. Pourtant nous avons vu dans l'introduction de cette discussion qu'en régime stationnaire on ne s'attend pas à des profils différents pour un fluide viscoélastique de viscosité constante et pour un fluide newtonien, avec ou sans interface avec un autre fluide newtonien. On pourrait donc penser que ce résultat serait extrapolable à la situation de démarrage traitée ensuite. Ce n'est pas le cas comme l'ont montré les résultats présentés au Chapitre 4 : à vitesse donnée les profils de l'interface restent d'autant plus plats que les propriétés élastiques du matériau sont importantes.

Compte tenu de toute notre analyse ci-dessus la seule explication possible à ce phénomène réside dans la présence de contraintes normales additionnelles. Examinons à nouveau les équations du mouvement. Pour plus de clarté on va d'abord considérer l'écoulement permanent uniforme en 2D en cellule de Hele-Shaw d'un fluide viscoélastique.

Compte tenu de l'indépendance des variables (excepté la pression) par rapport à  $y$  dans ce cas les équations du mouvement s'écrivent ici

$$\frac{\partial \tau_{yz}}{\partial z} - \frac{\partial p}{\partial y} = 0 ; \quad \frac{\partial \tau_{zz}}{\partial z} - \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (5.9)$$

Comme on l'a vu au Chapitre 7 la solution dans la résolution de ce système dans le cas newtonien conduit à  $\tau_{zz} = 0 = \tau_{yy}$  et  $\partial \tau_{yz} / \partial z = A = \partial p / \partial y$ , ce qui nous donne :

$$v(z) = -\left(A/2\mu\right)(d^2 - z^2) \quad (5.10)$$

Supposons maintenant que l'on a affaire à un fluide développant des contraintes normales  $\tau_{yy}$  et  $\tau_{zz}$  qui, compte tenu du problème considéré (écoulement permanent dans une conduite droite) ne dépendent que de  $y$ . Si en outre on suppose pour simplifier que  $\tau_{zz} = \alpha\mu \partial v / \partial z$  on trouve que la pression s'exprime sous la forme

$$p = f(z) + Ay \quad (5.11)$$

avec  $\partial \tau_{yz} / \partial z = A$ . Par conséquent le profil des vitesses est encore donné par l'équation ci-dessus mais maintenant la pression contient un terme additionnel qui dépend de  $z$  :

$$p(y, z) = A[y + \alpha z] \quad (5.12)$$

Ce terme additionnel de pression, qui varie avec la distance à la paroi, va pouvoir jouer un rôle dans le cas où il existe une interface avec un fluide de comportement rhéologique différent, par exemple newtonien. Dans ce dernier cas en effet la pression ne varie pas dans l'épaisseur pour  $y$  donné. Ceci implique qu'il va nécessairement y avoir un décalage de pression le long de l'interface si l'on suppose que les profils de vitesse déterminés séparément se développent effectivement de cette façon. Ceci n'est pas possible en l'absence d'effets capillaires importants. Pour éviter ce décalage de pression le profil des vitesses va s'ajuster à une autre valeur autour de l'interface. D'après l'équation ci-dessus pour la pression l'interface devrait être déplacée vers les plus grands  $y$  (où la pression est plus faible) lorsque  $z$  augmente. Cet effet conduit donc à « redresser » le profil de l'interface, à le rendre plus plat. Bien sûr ici il ne s'agit que d'une tendance, nous ne sommes pas capables de décrire plus loin les évolutions de ce profil.

Revenons maintenant au problème en 3D. Les équations du mouvement s'écrivent :

$$\frac{\partial \tau_{yz}}{\partial z} + \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial x} - \frac{\partial p}{\partial y} = 0 ; \frac{\partial \tau_{zz}}{\partial z} - \frac{\partial p}{\partial z} = 0 ; \frac{\partial \tau_{xx}}{\partial x} - \frac{\partial p}{\partial x} = 0 \quad (5.13)$$

On suppose que  $\tau_{zz} = \alpha\mu \partial v / \partial z$  et  $\tau_{xx} = \beta\mu \partial v / \partial z$ . Puis on écrit encore la vitesse sous la forme :  $v(z,x) = v_0(z)(1 + \varepsilon(x))$ , où  $v_0$  est la solution de l'écoulement perturbé par les contraintes normales dans l'épaisseur, ce qui nous permet de décomposer le système d'équations en :

$$\mu \frac{\partial^2 v_0}{\partial z^2} - A = 0 ; \alpha\mu(1 + \varepsilon(x)) \frac{\partial^2 v_0}{\partial z^2} - \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (5.14)$$

et

$$\mu \left[ \frac{\partial^2 v_0 \varepsilon}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 v_0 \varepsilon}{\partial x^2} \right] - A \xi_v(x) = 0 ; \beta\mu \frac{\partial v_0}{\partial z} \frac{\partial \varepsilon}{\partial x} - \frac{\partial p}{\partial x} = 0 \quad (5.15)$$

Si  $\varepsilon \ll 1$  le facteur  $(1 + \varepsilon(x))$  vaut pratiquement 1 si bien que la solution du premier système d'équations est la même que dans le problème 2D avec  $p(y,z) = A[y + \alpha z]$ . Quant au second système d'équations il admet pour solution une expression telle que  $v_0 \varepsilon \propto A/\mu$  avec un champ de pression spécifique  $p(x,y,z) \approx A \xi_v [y + \beta z \varepsilon]$ .

On se retrouve dans la même situation que ci-dessus, de découplage possible des différents effets, qui nous amène à conclure que l'effet des contraintes normales sur le profil des vitesses dans la direction  $x$  va être du même type que les effets que l'on a pu identifier en 2D. Ainsi on s'attend aussi, du fait de la présence dans la pression d'un terme additionnel tirant son origine des contraintes normales, i.e.  $A\beta z$ , à une déformation de l'interface pour compenser cet effet.

L'ensemble de cette approche théorique s'appuie sur un certain nombre d'hypothèses raisonnables mais ne permet pas de déduire quantitativement la déformation de l'interface induite, notamment parce qu'on ne prend pas vraiment en compte les effets temporels. Cette approche permet en revanche de mettre en valeur des mécanismes vraisemblablement à l'origine du phénomène observé.

Finalement on peut encore traduire plus directement et plus simplement la conclusion de cette approche en ne supposant pas particulièrement des contraintes normales proportionnelles au gradient de vitesse. Alors le résultat de notre analyse s'exprime ainsi : la

présence de contraintes normales aurait tendance à induire un saut de pression de l'ordre de  $\tau_{xx}$  qui est évité en déformant l'interface par rapport à ce qu'elle aurait du sous le seule action des gradients de pression selon  $x$  et  $y$ .

Un point crucial à noter ici est que les développements ci-dessus permettent de conclure que l'on peut s'attendre à ce que les effets de contraintes normales observés dans le plan  $(x,y)$  soient qualitativement analogues à ceux qui se produisent dans le plan  $(y,z)$ . Ainsi en principe les observations que nous menons dans le plan  $(x,y)$  sont bien le reflet des tendances générales de l'écoulement.

### 5.2.4 Impact des contraintes normales sur la déformation du profil de l'interface : généralisation

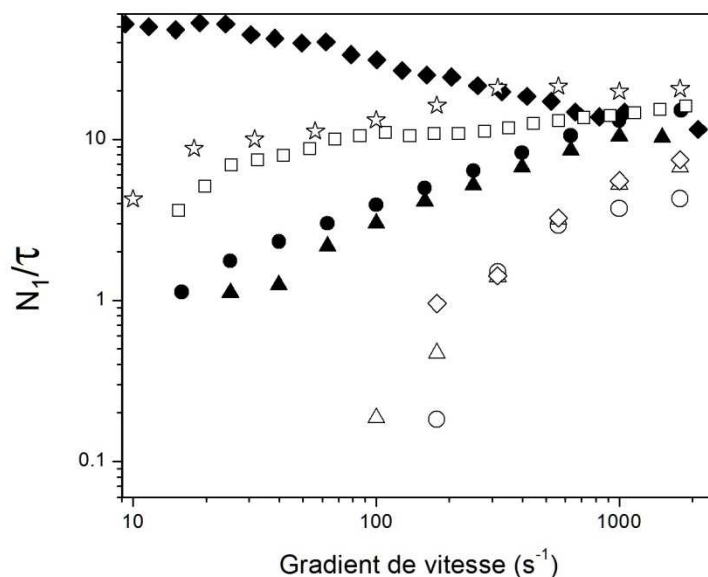
Dans l'exemple précédent on a supposé que les contraintes tangentielles avaient une forme newtonienne et que les contraintes normales étaient simplement proportionnelles au gradient de vitesse. On peut extrapoler cette approche en supposant plus généralement que ces contraintes normales sont proportionnelles aux contraintes tangentielles via respectivement des coefficients  $\alpha = \tau_{zz}/\tau_{yz}$  et  $\beta = \tau_{xx}/\tau_{yz}$ . Alors le terme de pression additionnelle qui va éventuellement induire une déformation de l'interface par rapport à celle attendue en l'absence de contraintes normales s'exprime encore  $A\xi_V\beta z\varepsilon$  alors que le terme principal de pression induisant la déformation « normale » de l'interface vaut  $A\xi_V y$ . Il est malheureusement difficile d'aller plus loin en l'absence de connaissance concernant  $\xi_V(x)$ . On peut cependant conclure que toutes choses égales par ailleurs l'impact des contraintes normales sur la déformation additionnelle de l'interface dépendra de la valeur de  $\beta = \tau_{xx}/\tau_{yz}$ .

Il est intéressant de remarquer que finalement l'effet que nous avons observé dans ces écoulements en cellule présente une forte analogie avec l'effet de gonflement d'un jet de fluide viscoélastique en sortie de filière. Dans ce dernier cas des contraintes normales élevées se sont développées lors du cisaillement dans la filière, qui tendent à repousser les parois. Lorsque le fluide sort de la filière ces contraintes normales subsistent quelques instants et tendent à dilater le jet de fluide. Dans notre cas (écoulement en cellule) les effets viscoélastiques se développent dès le démarrage de l'écoulement et tendent à faire en sorte

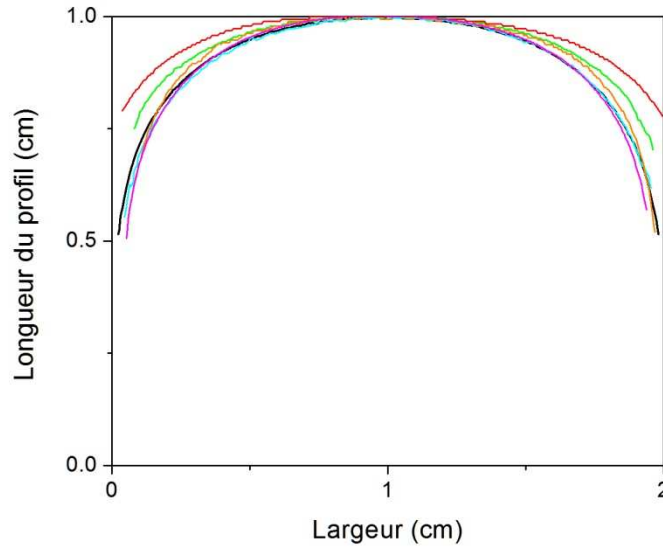
que le « jet » de fluide viscoélastique formé par le fluide déplaçant occupe la plus large place dans la cellule, ce qui induit un profil d'interface plus « collé » contre les parois.

### 5.2.5 Comparaison avec les résultats expérimentaux

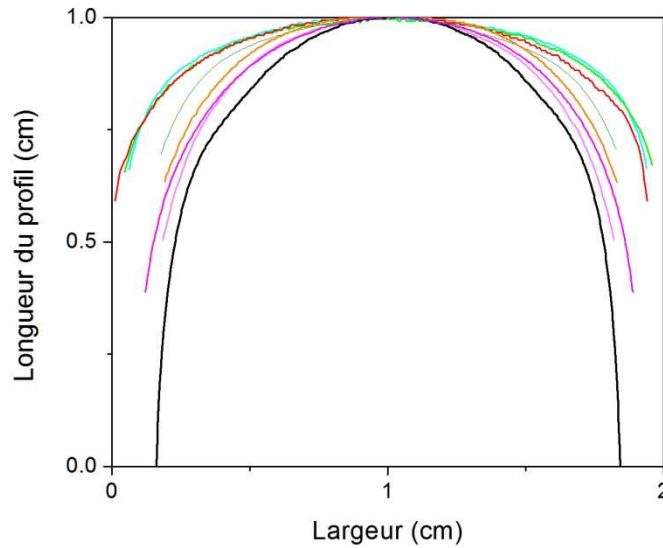
On a vu que pour les différentes formulations on a effectivement un profil de l'interface qui se maintient à une certaine forme lorsqu'on augmente la vitesse. On a plusieurs situations différentes (Figure 123 et Figure 124) en ce qui concerne les variations des contraintes normales pour nos différentes formulations (Figure 122) et il est finalement difficile de commenter ces résultats de manière générale, chaque cas est un cas particulier. On peut plus facilement commenter et interpréter les résultats obtenus avec le PEG-PEO4 en variant la concentration, ce qui a permis d'avoir une formulation pour laquelle le facteur  $\beta$  varie dans une large gamme.



**Figure 122** : Relation entre la contrainte normale et la contrainte tangentielle des fluides : PAM-6000 (●), PAM-4000 (▲), PEG-PEO8-800 (◆), PEG-PEO4-3000 (☆), PEG-PEO4-2000 (□), PEG-PEO4-1500 (○), PEG-PEO4-1000 (△), PEG-PEO4-500 (○), en fonction du gradient de vitesse.



**Figure 123:** Comparaison des profils de l'interface à  $v_{fi}=1$  cm/s entre Canadou (noir), PEG-PEO8-800 (rouge), PAM-6000 (vert), PAM-4000 (cyan), PEG-PEO4-2000 (orange) et PEG-PEO4-1000 (magenta). Longueur du profil en fonction de la largeur de la géométrie. Seulement les fluides plus élastiques sont différenciables du Canadou.



**Figure 124 :** Comparaison des profils de l'interface à  $v_{fi}=5$  cm/s entre Canadou (noir), PEG-PEO8-800 (rouge), PAM-6000 (vert), PAM-4000 (cyan), PEG-PEO4-3000 (gris), PEG-PEO4-2000 (orange) PEG-PEO4-1000 (magenta) et PEG-PEO4-500 (rose). Longueur du profil en fonction de la largeur de la géométrie. A noter les différences pour la gamme des concentrations du PEG-PEO4.

### 5.2.6 Effets élongationnels

On a vu que les effets élongationnels peuvent être importants avec nos formulations, puisque le nombre de Trouton est parfois largement supérieur à 4 (voir Figure 57). Cependant ces effets n'ont que très peu de chances de jouer un rôle dans les écoulements dans cette cellule. En effet compte tenu du fait que l'on a affaire à une géométrie uniforme selon  $y$  on n'attend pas de mouvements de fluide dans les directions  $x$  et  $z$ . ceci est évident en régime stationnaire car cela conduirait à un écoulement net à travers les parois ou bien à des mouvements de recirculation associés à des instabilités. La symétrie du problème impose finalement que la vitesse soit uniquement dirigée le long de  $y$ . La forme des profils de vitesse dans ce régime (voir Figure 121) confirme ce résultat puisqu'on « voit » le fluide s'avancer en bloc dans la direction  $y$ . Lors du démarrage il peut en revanche y avoir quelques mouvements latéraux tendant par exemple à chasser le fluide déplacé des parois, mais ce type de mouvement reste probablement négligeable et il semble très naturel de supposer que le mouvement général a lieu selon  $y$ . Dans ces conditions il s'agit d'un cisaillement simple et il n'y a pas d'effet d'élongation. L'interface s'étire simplement sous l'effet de ce cisaillement simple.

### 5.2.7 Ecoulements à travers des restrictions

Nos observations (Figure 107 et Figure 108) montrent que pour un écoulement suffisamment peu rapide, autrement dit quand les effets et les contraintes normales sont suffisamment faibles les caractéristiques de l'écoulement sont identiques à celles d'un fluide newtonien : l'interface se déforme assez près de l'entrée de la filière puis s'élargit de manière symétrique en sortie de filière. Lorsque la vitesse est suffisamment élevée pour les fluides viscoélastiques, ou plus généralement lorsque les contraintes normales sont suffisamment fortes, comme on peut le voir clairement en augmentant la concentration du PEG-PEO4 sur la Figure 108, les caractéristiques de l'interface entre les deux fluides sont différentes. On a d'abord un resserrement de l'interface qui démarre bien avant l'entrée dans la filière. Cet effet est tout à fait opposé à celui de contraintes normales, il provient certainement d'effets élongationnels dans : effectivement, pour pénétrer dans la filière le fluide doit s'étirer ; lorsque les dissipations visqueuses associées sont importantes du fait de la viscosité élongationnelle plus importante avec certains fluides viscoélastiques qu'avec un fluide newtonien [96;97], et ces dissipations peuvent être minimisées à travers un taux d'élongation



plus faible que si l'entrée était brutale. A la sortie de la filière on pourrait s'attendre au même type dans le sens inverse, c'est-à-dire un élargissement progressif pour minimiser les dissipations résultant des effets élongationnels. C'est exactement l'effet inverse qu'on observe : un élargissement d'autant plus brutal lorsque la vitesse ou la concentration augmente. On peut naturellement attribuer cet effet, qui ressemble beaucoup à l'élargissement d'un jet de fluide viscoélastique à l'air libre en sortie de filière, aux contraintes normales qui se développent dans la filière. On peut donc en conclure qu'ici les effets de contraintes normales prennent clairement le pas sur les effets élongationnels (qui sont pourtant bien sûr présents aussi en sortie de filière).

A noter que dans le cas d'une filière de forme hyperbolique (Figure 109 et Figure 110) il est probable que les différents effets se compensent, ce qui expliquerait que l'on n'observe aucune différence entre l'ensemble des profils au cours du temps à différentes vitesses et pour différents fluides.

Cette expérience est particulièrement intéressante car elle montre que les « effets élongationnels » (nombre de Trouton significativement différent de 4) et de contraintes normales, tous deux en général présents en même temps dans le comportement des fluides viscoélastiques, agissent tous deux mais dans des circonstances différentes à travers un milieu poreux modèle.

### **5.2.8 Implications pour les écoulements de fluides viscoélastiques en milieux poreux**

Voyons maintenant comment tirer des conclusions de nos observations concernant la qualité du « nettoyage » d'un milieu poreux saturé d'huile newtonienne par un fluide viscoélastique. D'après nos expériences en cellule et leur interprétation on peut conclure qu'il est favorable d'utiliser un fluide viscoélastique pour mieux nettoyer une cellule droite, puisque des différences sensibles vont apparaître à des vitesses suffisamment élevées. Il faut remarquer que ces différences seront sensibles uniquement au démarrage de l'écoulement : on va emporter un peu plus d'huile sur les bords avec le fluide viscoélastique. Ensuite, en régime stationnaire, il n'y a plus de différence.

En réalité un milieu poreux est plus complexe qu'une cellule droite. Les fluides rencontrent sans cesse des resserrements et des élargissements des conduits. Il est probable que l'on se trouve souvent alors plus proche d'une situation telle que celle étudiée à travers la restriction. Dans ce cas on constate que l'effet d'un fluide viscoélastique est finalement mitigé : à l'entrée d'une restriction il a tendance à moins bien nettoyer l'huile, alors qu'à la sortie il a tendance à mieux nettoyer.

# Conclusions

---

L'objectif principal de la thèse consistait à étudier comment les propriétés viscoélastiques bien identifiées de fluides utilisés en récupération assistée du pétrole pouvaient contribuer à modifier les conditions de déplacement de l'huile, et ainsi diminuer la saturation résiduelle en huile dans le réservoir. Pour cela, nous avons réalisé des expériences de déplacement immiscible en utilisant des fluides et des géométries d'écoulement nous permettant de bien identifier les différents paramètres. Les fluides de travail ont été formulés et caractérisés afin contrôler leur caractère élastique et visqueux sur une large gamme et la géométrie d'écoulement a été choisie afin d'être suffisamment simple mais représentative d'un phénomène de déplacement.

Après une description des techniques de récupération assistée, et un état des lieux des connaissances sur les mécanismes physiques en jeu, nous avons présenté l'état de l'art concernant l'influence des propriétés viscoélastiques des fluides utilisés sur l'efficacité du procédé. La bibliographie à ce sujet est peu abondante, et presque exclusivement issue de travaux de chercheurs du champ pétrolier de Daqing en Chine. Leurs conclusions montrent que l'élasticité des solutions employées en polymer flooding a un effet positif sur la saturation résiduelle en huile lors d'expériences de déplacement. Cependant, malgré la combinaison de travaux expérimentaux, numériques et de données de champs présentés, le manque de détails sur les expériences et les résultats obtenus, ainsi que l'imprécision des données et caractéristiques rhéologiques rend difficile de donner une conclusion sans équivoque sur ces phénomènes.

Pour nos expérimentations, nous avons formulé trois familles de fluides de propriétés rhéologiques contrôlées et caractérisées. En premier lieu, les fluides à base de polyacrylamide utilisant un solvant visqueux Newtonien primaire (Canadou) nous ont

permis d'obtenir deux formulations notées PAM-6000 et PAM-4000, avec différents niveaux de viscosité constante à gradient de vitesse nulle (0.49 Pa.s et 0.18 Pa.s respectivement), avec un caractère rhéofluidifiant atténué par rapport aux solutions de polyacrylamide aqueuses, et avec des valeurs non négligeables de différences de contraintes normales  $N_1$ . Une deuxième famille de fluides utilise le PEG (Poly Ethylène Glycol) 50 % comme solvant principal et le PEO (Poly Ethylène Oxyde) de deux masses moléculaires différentes, nous a donné des formulations de divers niveaux d'élasticité en variant la concentration du PEO4. Une troisième famille de formulations PIB-PIB, bien que très prometteuse, n'a pas pu être utilisée du fait de leur très haute viscosité et de la difficulté à identifier un fluide aqueux immiscible de densité inférieure à la densité des formulations.

Un soin particulier a été apporté au choix et à l'optimisation de la géométrie d'écoulement de type cellule de Hele-Shaw, ainsi qu'à la mise en œuvre des expériences de déplacement. L'utilisation de restrictions nous a permis de progressivement complexifier l'écoulement en ajoutant des composantes élongationnelles. Enfin, des expérimentations utilisant des microsystèmes en PDMS ont été réalisées afin de s'approcher de l'échelle du pore. La première série d'expériences, c'est-à-dire le déplacement immiscible d'une huile moins visqueuse par les fluides viscoélastiques PEG-PEO8, PAM-6000 et PAM-4000 et par le fluide Newtonien de référence dans la cellule de Hele-Shaw, nous a permis de dégager un certain nombre de résultats notables. L'interface huile/fluide aqueux (qui se déplace à une vitesse macroscopique constante imposée par le débit), est progressivement déformée (à partir d'une position droite) durant les premiers instants de l'écoulement avant d'atteindre un état stationnaire après une certaine distance parcourue dans la cellule. Pour le fluide Newtonien, à faible vitesse le profil de l'interface est très plat, puis il s'arrondit progressivement et relativement fortement aux fortes vitesses avant une vitesse critique où il devient instable. Ce profil stationnaire ne dépend pas de la viscosité du fluide pousseur, ni des éventuelles propriétés rhéofluidifiantes comme l'ont montré des essais à différents niveaux de viscosité ou avec des solutions de Xanthane. Le point remarquable est la différence notable entre cette forme stationnaire dans le cas Newtonien et le cas viscoélastique. Peu visibles à faibles vitesses, des différences importantes dans la forme des profils apparaissent à partir d'une vitesse critique : les profils du fluide newtonien sont plus courbés que ceux du fluide viscoélastique et ces profils s'écartent l'un de l'autre lorsque la vitesse augmente. Cependant, le profil du fluide viscoélastique atteint une forme stable en fonction de la vitesse au-delà d'une deuxième vitesse critique qui dépend du niveau

d'élasticité du fluide considéré. Des expérimentations faisant varier la tension interfaciale des fluides utilisés nous ont permis de mettre en évidence l'effet prédominant de l'élasticité sur les effets de tension.

Les expériences d'écoulement à travers des restrictions nous ont permis de confirmer la tendance des fluides viscoélastiques dans les régimes transitoires à former des fronts plus larges que les fluides newtoniens déplaçants. Elles nous ont également permis de distinguer les effets élongationnels des effets de contraintes normales. Finalement, si l'on tente d'extrapoler ces résultats aux écoulements réels en récupération assistée on en conclut qu'un fluide viscoélastique développant des contraintes normales importantes est de moins en moins efficace pour déplacer l'huile avant la restriction lorsque la vitesse de balayage augmente, mais en revanche déplacent plus d'huile à la sortie de la restriction par un effet de « grattage » des coins.

Nous n'avons pas pu tirer de conclusions nettes à partir des résultats obtenus dans les micromodèles, probablement parce que les caractéristiques de cet écoulement résultent du couplage de nombreux phénomènes : forme du profil de l'interface issue de l'écoulement en amont des trous, effets transitoires, effets élongationnels et effets de contraintes normales à la fois à l'entrée et à la sortie du trou. Ces expériences ont au moins le mérite de montrer que, contrairement à ce que l'on était tenté d'en déduire à partir des travaux précédents, cette géométrie n'est certainement pas adaptée pour distinguer clairement l'impact du comportement élastique sur les caractéristiques des écoulements en milieux poreux. Notons au passage que cette géométrie ne représente de toute façon qu'un type particulier de configuration géométrique au sein d'un poreux, i.e. les « dead end pores ».

En utilisant des géométries d'écoulement modèles, et des fluides aux propriétés rhéologiques bien maîtrisées, nous avons pu dans ce travail apporter des éléments de compréhension sur l'influence des caractéristiques bien identifiables de fluides viscoélastiques sur les conditions de déplacement d'une huile par un fluide immiscible. Les résultats indiquent que lorsque les contraintes normales sont suffisamment élevées les fluides viscoélastiques ont tendance à mieux nettoyer une conduite initialement remplie d'huile. Notre analyse théorique semble montrer que cet effet est finalement l'analogue de l'effet de gonflement d'un jet viscoélastique en sortie de filière. Cependant nos expériences ont également montré que dans certaines conditions ces effets peuvent être contrecarrés par des effets élongationnels. Il serait intéressant de prolonger ces travaux d'une part avec des géométries se rapprochant un peu plus de celle d'un milieu poreux modèle (en particulier

avec l'outil microfluidique), et d'autre part en réalisant des expériences avec des milieux poreux réels, en quantifiant le taux de déplacement de l'huile au cours du temps, tout en conservant la base de notre approche qui consiste à contrôler les caractéristiques des fluides utilisés. Cette généralisation aux géométries complexes permettra d'apporter une compréhension globale de l'effet de la viscoélasticité sur l'efficacité des procédés de récupération assistée, et de fournir ainsi un paramètre de formulation supplémentaire pour optimiser les opérations.

## References Bibliographiques

1. Thomas S. Enhanced Oil Recovery : An Overview. *Oil & Gas Science and Technology - Rev.IFP* 2008; **63**: 9-19.
2. Terry R. Enhanced oil recovery. In: Robert A Meyers, ed. *Encyclopedia of Physical Science and Technology*. Academic Press, 2000; 503-18.
3. Buridant J, Figliuzzi A, Montouss M, Waquet I. *Histoire des faits économiques*. Breal, 2007.
4. Letorneau, J. Oilfield Hacks and Future Oil Prices. Seeking Alpha . 1-12-2007. 19-12-2007.

Ref Type: Electronic Citation

5. Guyon E, Hulin JP, Petit L. *Hydrodynamique physique*. EDP sciences, 2001.
6. Salager, JL. Recuperacion Mejorada del Petroleo. ULA. [S357-C]. 2005. Merida. Cuadernos FIRP.

Ref Type: Serial (Book, Monograph)

7. de Gennes PG, Brochard-Wyart F, Quere D. *Capillarity and wetting phenomena: drops, bubbles, pearls, waves*. Springer, 2004.
8. Muskat M. The Flow of Fluids Through Porous Media. *Journal of Applied Physics* 1937; **8**: 274.
9. Saffman PG, Taylor G. The Penetration of a Fluid into a Porous Medium or Hele-Shaw Cell Containing a More Viscous Liquid. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* 1958; **245**: 312-29.
10. Saffman PG. Viscous fingering in Hele-Shaw cells. *Journal of Fluid Mechanics* 1986; **173**: 73-94.
11. Hou J, Liu Z, Zhang S, Yue X, Yang J. The role of viscoelasticity of alkali/surfactant/polymer solutions in enhanced oil recovery. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 2005; **47**: 219-35.
12. Farouq A, Thomas S. A Realistic Look at Enhanced Oil Recovery. *Scientia Iranica* 1994; **1**: 219-30.
13. Nguyen VH, Sheppard AP, Knackstedt MA, Val Pinczewski W. The effect of displacement rate on imbibition relative permeability and residual saturation. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 2006; **52**: 54-70.
14. Dongmei W, Randall S, Seright, Zhenbo S, Jinmei W. Key Aspects of Project Design for Polymer Flooding at the Daqing Oilfield. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering* 2008; **SPE 109682**.

15. Needman R, Doe P. Polymer Flooding Review. *SPE Journal of Petroleum Technology* 1987; **SPE 17140**.
16. Seright R, Seheult M, Talashek T. Injectivity Characteristics of EOR Polymers. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering* 2009; **SPE 115142**.
17. Osterloh, W. T. and Law, E. J. Polymer Transport and Rheological Properties for Polymer Flooding in the North Sea Captain Field. SPE 39694. 1998. Tulsa, Oklahoma, Society of Petroleum Engineers. SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium. 1-1-1998.

Ref Type: Conference Proceeding

18. Williams PA. *Handbook of industrial water soluble polymers*. Blackwell Pub., 2007.
19. Zirnsak MA, Boger DV. Axisymmetric entry flow of semi-dilute xanthan gum solutions: prediction and experiment. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 1998; **79**: 105-36.
20. Kohler N, Chauveteau G. Xanthan Polysaccharide Plugging Behavior in Porous Media - Preferential Use of Fermentation Broth. *SPE Journal of Petroleum Technology* 1981; **SPE 7425**.
21. Bonn D, Meunier J. Viscoelastic Free-Boundary Problems: Non-Newtonian Viscosity vs Normal Stress Effects. *Physical Review Letters* 1997; **79**: 2662-5.
22. Yupu, Wang and He, Liu. Commercial Success of Polymer Flooding in Daqing Oilfield. Lessons Learned. SPE 100855. 2006. Adelaide, Australia, Society of Petroleum Engineers. SPE Asia Pacific Oil & Gas Conference and Exhibition. 1-1-2006.

Ref Type: Conference Proceeding

23. Wang, Demin, Sun, Yingjie, Wang, Yan, and Tang, Xuping. Producing More Than 75% of Daqing Oil Field's Production by IOR, What Experiences Have Been Learnt? SPE 77871. 2002. Melbourne, Australia, Copyright 2002, Society of Petroleum Engineers Inc. SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition. 1-1-2002.

Ref Type: Conference Proceeding

24. Pascal H, Pascal F. On viscoelastic effects in non-Newtonian steady flows through porous media. *Transport in Porous Media* 1989; **4**: 17-35.
25. Slattery JC. Flow of Viscoelastic Fluids Through Porous Media. *AIChE Journal* 1967; **13**: 1066-71.
26. Chhabra RP, Richardson JF. *Non-Newtonian Flow and Applied Rheology: Engineering Applications*. Elsevier Science, 2008.
27. Gucuyener IH, Kok MV, Batmaz T. End Effect Evaluation in Rheological Measurement of Drilling Fluids Using Coutte Coaxial Cylinder Viscometer. *Energy Sources* 2002; **24**: 441-9.



28. Malkus DS, Pritchard WG, Yao M. The hole-pressure effect and viscometry. *Rheologica Acta* 1992; **31**: 521-34.
29. Srinivasan R. The hole pressure problem: On the Higashitani-Pritchard theory for transverse and axial slots. *Rheologica Acta* 1987; **26**: 107-18.
30. de Souza Mendes PR, Naccache MnF, Varges PR, Marchesini FH. Flow of viscoplastic liquids through axisymmetric expansionsΓÇôcontractions. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 2007; **142**: 207-17.
31. Yue P, Dooley J, Feng JJ. A general criterion for viscoelastic secondary flow in pipes of noncircular cross section. *Journal of Rheology* 2008; **52**: 315-32.
32. McKinley GH, Raiford WP, Brown RA, Armstrong RC. Nonlinear dynamics of viscoelastic flow in axisymmetric abrupt contractions. *Journal of Fluid Mechanics* 1991; **223**: 411-56.
33. Mackay ME, Petrie C. Estimates of apparent elongational viscosity using the fibre spinning and pure methods. *Rheologica Acta* 1989; **28**: 281-93.
34. Jones, D. M. and Walters, K. Extensional Viscosity Effects in EOR. SPE 18070. 1988. Houston, Texas, 1988 Copyright 1988, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-1988.

Ref Type: Conference Proceeding

35. Lenormand R, Zarcone C, Sarr A. Mechanisms of the displacement of one fluid by another in a network of capillary ducts. *Journal of Fluid Mechanics* 1983; **135**: 337-53.
36. Lenormand R, Touboul E, Zarcone C. Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media. *Journal of Fluid Mechanics* 1988; **189**: 165-87.
37. Wilson SDR. The Taylor-Saffman problem for a non-Newtonian liquid. *Journal of Fluid Mechanics* 1990; **220**: 413-25.
38. Lindner A, Bonn D, Eugenia C, Amar M, Meunier J. Viscous fingering in non-Newtonian fluids. *Journal of Fluid Mechanics* 2002; **469**: 237-56.
39. Wang, Demin, Cheng, Jiecheng, Yang, Qingyan, Gong, Wenchao, Li, Qun, and Chen, Fuming. Viscous-Elastic Polymer Can Increase Microscale Displacement Efficiency in Cores. SPE 63227. 2000. Dallas, Texas, Copyright 2000, Society of Petroleum Engineers Inc. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-2000.

Ref Type: Conference Proceeding

40. Zaitoun, A. and Kohler, N. Two-Phase Flow Through Porous Media: Effect of an Adsorbed Polymer Layer. SPE 18085. 1988. Houston, Texas, 1988 Copyright 1988, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-1988.

Ref Type: Conference Proceeding

41. Yoshihiro M, Ke-Chin T, Masashi M, Shoichi T. 1D Simulation of Polymer Flooding Including the Viscoelastic Effect of Polymer Solution. *SPE Reservoir Engineering* 1992; **SPE 19499**.
42. Allen, E. and Boger, D. V. The Influence of Rheological Properties on Mobility Control in Polymer-Augmented Waterflooding. SPE 18097. 1988. Houston, Texas, 1988 Copyright 1988, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-1988.

Ref Type: Conference Proceeding

43. Camilleri D, Fil A, Pope GA, Rouse BA, Sepehrnoori K. Improvements in Physical-Property Models Used in Micellar/Polymer Flooding. *SPE Reservoir Engineering* 1987; **SPE 12723**.
44. Xia, Huifen, Ju, Ye, Kong, Fanshun, and Wu, Junzheng. Effect of Elastic Behavior of HPAM Solutions on Displacement Efficiency under Mixed Wettability Conditions. SPE 90234. 2004. Houston, Texas, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-2004.

Ref Type: Conference Proceeding

45. Xia, Huifen, Wang, Demin, Wu, Junzheng, and Kong, Fanshun. Elasticity of HPAM Solutions Increases Displacement Efficiency under Mixed Wettability Conditions. SPE 88456. 2004. Perth, Australia, Society of Petroleum Engineers. SPE Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition. 1-1-2004.

Ref Type: Conference Proceeding

46. Hongjun, Yin, Demin, Wang, and Huiying, Zhong. Study on Flow Behaviors of Viscoelastic Polymer Solution in Micropore With Dead End. SPE 101950. 2006. San Antonio, Texas, USA, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-2006.

Ref Type: Conference Proceeding

47. Barnes HA, Hutton JF, Walters K. *An introduction to rheology*. Elsevier, 1989.
48. Huh, C and Pope, G. Residual Oil Saturation From Polymer Floods: Laboratory Measurements and Theoretical Interpretation. SPE 99653. 2008. Tulsa, Oklahoma, USA, Society of Petroleum Engineers. SPE/DOE Symposium on Improved Oil Recovery. 1-1-2008.

Ref Type: Conference Proceeding

49. Demin, Wang, Gang, Wang, Wenxiang, Wu, Huifen, Xia, and Hongjun, Yin. The Influence of Viscoelasticity on Displacement Efficiency--From Micro- to Macroscale. SPE 109016. 2007. Anaheim, California, U.S.A., Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-2007.

Ref Type: Conference Proceeding

50. Huifen, Xia, Demin, Wang, Wenxiang, Wu, and Haifeng, Jiang. Effect of the Viscoelasticity of Displacing Fluids on the Relationship of Capillary Number and Displacement Efficiency in Weak Oil-Wet Cores. SPE 109228. 2007. Jakarta,

Indonesia, Society of Petroleum Engineers. Asia Pacific Oil and Gas Conference and Exhibition. 1-1-2007.

Ref Type: Conference Proceeding

51. Haifeng, Jiang, Wenxiang, Wu, Demin, Wang, Yeming, Zeng, Shiguang, Zhao, and Jun, Nie. The Effect of Elasticity on Displacement Efficiency in the Lab and Results of High Concentration Polymer Flooding in the Field. SPE 115315. 2008. Denver, Colorado, USA, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-2008.

Ref Type: Conference Proceeding

52. Huifen, Xia, Demin, Wang, Gang, Wang, Wen-guo, Ma, Hong, Wei Deng, and Jie, Liu. Mechanism of the Effect of Micro-Forces on Residual Oil in Chemical Flooding. SPE 114335. 2008. Tulsa, Oklahoma, USA, Society of Petroleum Engineers. SPE/DOE Symposium on Improved Oil Recovery. 1-1-2008.

Ref Type: Conference Proceeding

53. Demin, Wang, Huifen, Xia, Shuren, Yang, and Gang, Wang. The Influence of Visco-Elasticity on Micro Forces and Displacement Efficiency in Pores, Cores and in the Field. SPE 127453. 2010. Muscat, Oman, Society of Petroleum Engineers. SPE EOR Conference at Oil & Gas West Asia. 1-1-2010.

Ref Type: Conference Proceeding

54. Guo, Chen, Peihui, Han, Zhenbo, Shao, Xinliang, Zhang, Moran, Ma, Kewei, Lu, and Changqing, Wei. History Matching Method for High Concentration Viscoelasticity Polymer Flood Pilot in Daqing Oilfield. SPE 144538. 2011. Kuala Lumpur, Malaysia, Society of Petroleum Engineers. SPE Enhanced Oil Recovery Conference. 1-1-2011.

Ref Type: Conference Proceeding

55. Demin, Wang, Gang, Wang, Huifen, Xia, Shuren, Yang, and Wenxiang, Wu. Incremental Recoveries in the Field of Large Scale High Viscous-Elastic Fluid Flooding are Double that of Conventional Polymer Flooding. SPE 146473. 2011. Denver, Colorado, USA, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-2011.

Ref Type: Conference Proceeding

56. Demin, Wang, Gang, Wang, and Huifen, Xia. Large Scale High Visco-Elastic Fluid Flooding in the Field Achieves High Recoveries. SPE 144294. 2011. Kuala Lumpur, Malaysia, Society of Petroleum Engineers. SPE Enhanced Oil Recovery Conference. 1-1-2011.

Ref Type: Conference Proceeding

57. Markus, Buchgraber, Torsten, Clemens, Louis, Marie Castanier, and Anthony, Robert Kovscek. The Displacement of Viscous Oil by Associative Polymer Solutions. SPE 122400. 2009. New Orleans, Louisiana, Society of Petroleum Engineers. SPE Annual Technical Conference and Exhibition. 1-1-2009.

Ref Type: Conference Proceeding

58. Fermigier M. *Mecanique des fluides*. Dunod, 2007.
59. Barnes HA. *A handbook of elementary rheology*. University of Wales, Institute of Non-Newtonian Fluid Mechanics, 2000.
60. Dealy JM, Larson RG. *Structure and rheology of molten polymers: from structure to flow behavior and back again*. Hanser Publishers, 2006.
61. Trouton F. On the Coefficient of Viscous Traction and Its Relation to that of Viscosity. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A* 1906; **77**: 426-40.
62. Jones DM, Walters K, Williams PR. On the extensional viscosity of mobile polymer solutions. *Rheologica Acta* 1987; **26**: 20-30.
63. Boger DV. A highly elastic constant-viscosity fluid. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 1977; **3**: 87-91.
64. Boger DV, Nguyen H. A model viscoelastic fluid. *Polymer Engineering & Science* 1978; **18**: 1037-43.
65. Binnington RJ, Boger DV. Remarks on non-shear thinning elastic fluids. *Polymer Engineering & Science* 1986; **26**: 133-8.
66. Tam KC, Moussa T, Tiu C. Ideal elastic fluids of different viscosity and elasticity levels. *Rheologica Acta* 1989; **28**: 112-20.
67. Uhl JT, Prud'homme RK. On the anomalous normal stresses of polyacrylamide solutions reported by Boger and Cable. *Rheologica Acta* 1983; **22**: 243-4.
68. Sibillo V, Simeone M, Guido S. Break-up of a Newtonian drop in a viscoelastic matrix under simple shear flow. *Rheologica Acta* 2004; **43**: 449-56.
69. Stokes J, Graham L, Lawson N, Boger DV. Swirling flow of viscoelastic fluids. Part 1. Interaction between inertia and elasticity. *Journal of Fluid Mechanics* 2001; **429**: 67-115.
70. Stokes J, Graham L, Lawson N, Boger DV. Swirling flow of viscoelastic fluids. Part 2. Elastic effects. *Journal of Fluid Mechanics* 2001; **429**: 117-53.
71. Gauri V, Koelling KW. Extensional rheology of concentrated poly(ethylene oxide) solutions. *Rheologica Acta* 1997; **36**: 555-67.
72. Gauri V, Koelling KW. The motion of long bubbles through viscoelastic fluids in capillary tubes. *Rheologica Acta* 1999; **38**: 458-70.
73. Calado VnMA, White JM, Muller SJ. Transient behavior of Boger fluids under extended shear flow in a cone-and-plate rheometer. *Rheologica Acta* 2005; **44**: 250-61.
74. MacDonald MJ, Muller SJ. Shear rheology of polymer solutions near the critical condition for elastic instability. *Rheologica Acta* 1997; **36**: 97-109.

75. Solomon MJ, Muller SJ. Flow past a sphere in polystyrene-based Boger fluids: the effect on the drag coefficient of finite extensibility, solvent quality and polymer molecular weight. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 1996; **62**: 81-94.
76. Quintella EF, Souza Mendes PR, Carvalho MS. Displacement flows of dilute polymer solutions in capillaries. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 2007; **147**: 117-28.
77. Patton JT, Coats KH, Colegrove GT. Prediction of Polymer Flood Performance. *SPE Journal* 1971; **11**.
78. Choplin L, Carreau PJ, Kadi AA. Highly elastic-constant viscosity fluids. *Polymer Engineering & Science* 1983; **23**: 459-64.
79. Ait-Kadi A, Carreau PJ, Chauveteau G. Rheological Properties of Partially Hydrolyzed Polyacrylamide Solutions. *Journal of Rheology* 1987; **31**: 537-61.
80. Coussot P. *Rheometry of pastes, suspensions, and granular materials: applications in industry and environment*. Wiley-Interscience, 2005.
81. Sdougos HP, Bussolari SR, Dewey CF. Secondary flow and turbulence in a cone-and-plate device. *Journal of Fluid Mechanics* 1984; **138**: 379-404.
82. Macosko CW. *Rheology: principles, measurements, and applications*. VCH, 1994.
83. Pipe, C. Quantitative evaluation of the pressure drop in planar hyperbolic contraction-expansions. 27-7-2007.

Ref Type: Personal Communication

84. Carreau PJ. Rheological Equations from Molecular Network Theories. *Transactions of the Society of Rheology* 1972; **16**: 99-127.
85. Gondret P, Rakotomalala N, Rabaud M, Salin D, Watzky P. Viscous parallel flows in finite aspect ratio Hele-Shaw cell: Analytical and numerical results. *Physics of Fluids* 1997; **9**: 3.
86. Younggon S. Determination of shear viscosity and shear rate from pressure drop and flow rate relationship in a rectangular channel. *Polymer* 2007; **48**: 632-7.
87. McDonald JC, Duffy DC, Anderson JR *et al*. Fabrication of microfluidic systems in poly(dimethylsiloxane). *ELECTROPHORESIS* 2000; **21**: 27-40.
88. Choplin L, Carreau PJ. End effects for highly elastic-constant viscosity fluids. *Rheologica Acta* 1986; **25**: 95-101.
89. Spiegelberg SH, McKinley GH. Stress relaxation and elastic decohesion of viscoelastic polymer solutions in extensional flow. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 1996; **67**: 49-76.
90. Piroird K, Clanet C, Queřureü D. Capillary Extraction. *Langmuir* 2011; **27**: 9396-402.

91. Lee A, Shaqfeh E, Khomami B. A study of viscoelastic free surface flows by the finite element method: Hele–Shaw and slot coating flows. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 2002; **108**: 327-62.
92. Lee A, Shaqfeh E, Khomami B. Viscoelastic effects on interfacial dynamics in air-liquid displacement under gravity stabilization. *Journal of Fluid Mechanics* 2005; **531**: 59-83.
93. Hou TY, Li Z, Osher S, Zhao H. A Hybrid Method for Moving Interface Problems with Application to the Hele-Shaw Flow. *Journal of Computational Physics* 1997; **134**: 236-52.
94. Hornof V. Gravity Effects in the Displacement of Oil by Surfactant Solutions. *SPE Reservoir Engineering* 1987.
95. Bretherton FP. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics* 1961; **10**: 166-88.
96. Lubansky AS, Boger DV, Servais C, Burbidge AS, Cooper-White JJ. An approximate solution to flow through a contraction for high Trouton ratio fluids. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 2007; **144**: 87-97.
97. Ganvir V, Lele A, Thaokar R, Gautham BP. Simulation of viscoelastic flows of polymer solutions in abrupt contractions using an arbitrary Lagrangian Eulerian (ALE) based finite element method. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics* 2007; **143**: 157-69.